

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

United States Patent and Trademark
Office
(Box PCT)
Crystal Plaza 2
Washington, DC 20231
ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 03 February 1999 (03.02.99)	
International application No. PCT/JP98/03033	Applicant's or agent's file reference ZE-684
International filing date (day/month/year) 06 July 1998 (06.07.98)	Priority date (day/month/year) 04 July 1997 (04.07.97)
Applicant KODEMURA, Junji	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
14 January 1999 (14.01.99)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

K. Takeda

Telephone No.: (41-22) 338.83.38



(51) 国際特許分類6 C09J 123/26, 165/00, 171/12, H01B 1/20 // (C09J 123/26, 163:00) (C09J 165/00, 163:00) (C09J 171/12, 163:00)	A1	(11) 国際公開番号 WO99/01519 (43) 国際公開日 1999年1月14日(14.01.99)
(21) 国際出願番号 PCT/JP98/03033 (22) 国際出願日 1998年7月6日(06.07.98) (30) 優先権データ 特願平9/195066 1997年7月4日(04.07.97) JP (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 日本ゼオン株式会社(NIPPON ZEON CO., LTD.)(JP/JP) 〒100-0005 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 Tokyo, (JP) (72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてののみ) 小出村順司(KODEMURA, Junji)(JP/JP) 〒210-0863 神奈川県川崎市川崎区夜光一丁目2番1号 日本ゼオン株式会社 総合開発センター内 Kanagawa, (JP) (74) 代理人 弁理士 西川繁明(NISHIKAWA, Shigeaki) 〒116-0014 東京都荒川区東日暮里三丁目43番8号 ビジュアル・シティ 401号 Tokyo, (JP)		(81) 指定国 JP, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). 添付公開書類 国際調査報告書
(54)Title: ADHESIVE FOR SEMICONDUCTOR COMPONENTS (54)発明の名称 半導体部品接着剤 (57) Abstract An adhesive for semiconductor components, comprising as a substrate polymer at least one cyclic thermoplastic polymer having a number average molecular weight of 1,000 to 500,000 and selected from the group consisting of cyclic olefin polymers (a) and aromatic condensation polymers (b) having repeating units of an aromatic ring in the main chain; an adhesive sheet prepared from the adhesive; a semiconductor component package made by using the adhesive ; and a process for preparing the package.		

(57)要約

(a) 環状オレフィン系重合体及び (b) 主鎖中に芳香環の繰り返し単位を有する芳香族縮合系重合体からなる群より選ばれる少なくとも一種の数平均分子量が1,000~500,000の環構造含有熱可塑性重合体を基材高分子とする半導体部品接着剤、該接着剤からなる接着シート、該接着剤を用いた半導体部品パッケージ、及び該パッケージの製造方法。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AL	アルバニア	FI	フィンランド	LK	スリ・ランカ	SI	スロヴェニア
AM	アルメニア	FR	フランス	LR	リベリア	SK	スロヴァキア
AT	オーストリア	GA	ガボン	LS	レソト	SL	シエラ・レオネ
AU	オーストラリア	GB	英国	LT	リトアニア	SN	セネガル
AZ	アゼルバイジャン	GD	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SZ	スワジランド
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	TD	チャード
BB	バルバドス	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BE	ベルギー	GN	ギニア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BF	ブルキナ・ファソ	GM	ギニア・ビサウ	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BG	ブルガリア	GW	ギニア・ビサウ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR	トルコ
BJ	ベナン	GR	ギリシャ		共和国	TT	トリニダード・トバゴ
BR	ブラジル	HR	クロアチア	ML	マリ	UA	ウクライナ
BY	ベラルーシ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	UG	ウガンダ
CA	カナダ	ID	インドネシア	MR	モーリタニア	US	米国
CF	中央アフリカ	IE	アイルランド	MW	マラウイ	UZ	ウズベキスタン
CG	コンゴ	IL	イスラエル	MX	メキシコ	VN	ヴェトナム
CH	スイス	IN	インド	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラビア
CI	コートジボワール	IS	アイスランド	NL	オランダ	ZW	ジンバブエ
CM	カメルーン	IT	イタリア	NO	ノルウェー		
CN	中国	JP	日本	NZ	ニュージーランド		
CU	キューバ	KE	ケニア	PL	ポーランド		
CY	キプロス	KG	キルギスタン	PT	ポルトガル		
CZ	チェッコ	KP	北朝鮮	RO	ルーマニア		
DE	ドイツ	KR	韓国	RU	ロシア		
DK	デンマーク	KZ	カザフスタン	SD	スーダン		
EE	エストニア	LC	セントルシア	SE	スウェーデン		
ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SG	シンガポール		

明細書

半導体部品接着剤

5 < 技術分野 >

本発明は、半導体部品接着剤に関し、さらに詳しくは、環構造含有熱可塑性重合体を基材高分子とする、保存安定性、接着性、耐熱性、耐湿性、低吸水性、誘電特性（低誘電率及び低誘電正接）、生産性、機械的強度、及び長期信頼性に優れた半導体部品接着剤に関する。また、本発明は、該接着剤を用いて、半導体部品と配線基板とを接合させる工程を含む半導体部品パッケージの製造方法に関する。さらに、本発明は、該接着剤によって接着された半導体部品パッケージに関する。

15 < 背景技術 >

近年、高度情報化社会の急激な進展に伴い、コンピュータや通信機器などの情報処理機器の処理能力の向上、即ち、高速化が迫られており、また、携帯可能なように、小型化、軽量化が必要とされている。

20 こうした要求のなかで、情報処理速度を高速化するためには、機器に搭載される半導体部品の実装において、LSI、メモリ、その他の受動または能動部品などの相互接続配線をできる限り短くして高密度化することが有効である。この手法は、情報処理機器の小型化・軽量化にも有効である。

25 半導体部品の相互接続配線距離を短縮する手段としては、半導体チップを直接基板に搭載するベアチップ実装があるが、中でも半導

体チップ（半導体集積回路素子）の電極と配線基板の電極とをバンプ（微小金属突起；例えば、A Uバンプやハンダバンプ）を介して直接接合するフリップチップボンディング（F C）は、最も有効な方法である。

- 5 従来、フリップチップボンディングは、S n - P b系ハンダ等の金属材料を利用したメタラジカル接合が主流であった。より具体的に、配線基板上に半導体チップを搭載する場合、配線基板の導体パターン上に半導体チップを載せて、ハンダ付け接合を行っている。ハンダ付け工程では、リフローソルダリングに続いてフローソルダ
- 10 リングを行う必要があるため、工程が煩雑であり、また、耐熱性のない部品を搭載することができない。さらに、半導体部品の接着・接合において、接合部の微小化が進んでいるため、ハンダ接合での対応が困難となっている。

- そこで、電子機器の高密度実装化や小型化、電気性能の向上、製造コストの低減、組立の自動化などの要請に応えるため、非メタラ
- 15 ジカル接合を含む様々な表面実装技術が開発されている。例えば、半導体チップにバンプを形成し、配線基板上には絶縁樹脂層を形成し、両者を加熱・圧着することにより、バンプを介してダイレクトに半導体チップの電極と配線基板の電極を最短距離で接合する方法
- 20 が実用化されている。絶縁樹脂層は、通常、エポキシ樹脂などの接着性を有する熱硬化性樹脂により形成されており、電極間の接合と同時に、樹脂の硬化による半導体チップと配線基板との接着が行われる。

- また、半導体チップにバンプを形成し、配線基板上の導体パターンとの間隙に異方性導電膜を介在させ、押えつけることにより、半
- 25 導体チップのバンプと配線基板上の導体パターンとを圧接接合し、

電氣的接続を形成する方法が開発されている。異方性導電膜は、通常、結着樹脂中に、金属微粒子や表面に導電膜を設けた樹脂ボール（微粒子）などの導電性充填剤を分散させた異方性導電材から形成されている。異方性導電材を用いた接合機構は、異方性導電材中に分散された導電性充填剤がある確率を持って接続端子上に存在し、接合時に熱と圧力を加えることにより、導電性充填剤が端子間で点接触から面接触に近い状態にまで押しつぶされ、それによって、導電性を得ると共に、被着体を十分に接着し、安定した接合を行うというものである。導電性充填剤の充填量が多すぎると、端子間リークや接着力の低下を招き、逆に、少なすぎると、接続抵抗に問題が生じる。すなわち、導電性充填剤の分散量を調整することにより、横方向の絶縁性と上限端子間の導電性とのバランスをとり、さらには、接着力の制御も行っている。

絶縁樹脂や異方性導電材などを用いた非メタラジカル接合は、ハンダ接合に比べて、比較的低温で接合することができるという利点がある。非メタラジカル接合による実装は、ハンダ接合に比べて接合対象の材質の制限が少なく、その適用範囲が広い。また、接合の低温度化により、部品及び基板に対する耐熱要求を緩和することができると共に、フラックス洗浄が不要であることから、実装コストの低減を図ることができる。

従来、非メタラジカル接合において、前記の絶縁樹脂や結着樹脂として、接着性及び耐熱性の観点から、熱硬化性樹脂及び紫外線硬化性樹脂が汎用されている。しかしながら、熱硬化性樹脂や紫外線硬化性樹脂を用いて接合すると、組立工程上で発生した接合不良によるリペア性に問題があった。すなわち、接合時の加熱・加圧や紫外線照射により、これらの樹脂が硬化すると、不良品をリペアする

ことが極めて困難である。仮に半導体チップを配線基板から剥離することができたとしても、硬化した樹脂の残渣を除去することは難しい。半導体パッケージの場合、一部の欠陥のために全体をスクラップすることは、コスト的に多大の損失となる。したがって、配線
5 修理や半導体チップの交換、再使用などの技術の確立が求められている。

また、従来より、これらの用途においては、高温条件下での接続抵抗値の変動が小さいことから、特に熱硬化型のエポキシ樹脂（接着剤）が好ましく使用されている。エポキシ樹脂には、大別して、
10 予め主剤と硬化剤を混合しておく一液型と、使用時に主剤と硬化剤を混合する二液型とがある。しかし、主剤と硬化剤を予め混合した一液型エポキシ樹脂の場合には、未使用時に主剤と硬化剤とが反応するのを防止するために、冷凍保管が必要なものが大部分である。
15 一液型エポキシ樹脂は、低温硬化のため、室温でのポットライフはせいぜい1日程度であり、冷凍保管をしても、そのポットライフは2～3ヵ月程度である。しかも、一液型エポキシ樹脂を冷凍保管すると、使用時に室温に戻す必要があり、作業性が悪い。しかも、室温に戻す際に、一液型エポキシ樹脂が吸湿して、特性が劣化するという問題がある。

20 一方、主剤と硬化剤とを使用時に混合する二液型エポキシ樹脂の場合には、使用の都度、主剤と硬化剤とを混合しなければならず、作業性が悪いという問題がある。この種の接着剤による接合・接着においては、短時間に多くの部品を接合・接着するために、素早く確実に接着剤を塗布する塗布技術が重要である。通常は、スクリー
25 ン印刷法やディスペンサーによる吐出法が適用される。これらの方法を適用するに当たって問題となるのは、塗斑の発生である。二液型

エポキシ樹脂は、塗布量のコントロールが困難であり、塗斑が発生しやすく、安定した接着ができないという問題がある。

一液型及び二液型エポキシ樹脂の共通問題として、硬化させるまでの時間が長くなること、すなわち、生産性が低いという問題がある。また、絶縁樹脂や異方性導電材は、フィルムまたはシートの形態で使用する事が求められる場合があるが、エポキシ樹脂は、シートを形成する際に、タックフリーとなるように、部分的に硬化させる必要がある。このような部分的な硬化は、制御が難しく、しかも得られるシートの安定性や保存性に問題がある。

これに加えて、エポキシ樹脂は、接着性及び機械強度が十分ではなく、また、耐湿性、誘電特性、低不純物性に劣り、さらには、高温での誘電特性並びにその経時変化に問題がある。したがって、エポキシ樹脂は、高温及び高湿中で安定性と高信頼性を得るのは難しく、また、場合によっては、樹脂中の可動イオンが半導体部品に対し悪影響を与えることがある。

近年、環状オレフィンの繰返し単位を有する熱可塑性ノルボルネン系樹脂が、耐熱性、耐湿性、誘電特性、低不純物性に優れる樹脂材料として注目されている。例えば、特開昭62-27412号公報には、テトラシクロドデセンとエチレンとの付加重合体などの環状オレフィン共重合体をアリルグリシジルエーテルや無水マレイン酸によってグラフト変性させた変性環状オレフィン共重合体が開示されている。しかし、従来、このような熱可塑性ノルボルネン系樹脂を半導体部品の実装における接着剤として使用することは提案されていなかった。

< 発明の開示 >

本発明の目的は、保存安定性、接着性、耐熱性、耐湿性、低吸水性、誘電特性、生産性、機械的強度、及び長期信頼性に優れた半導体部品接着剤を提供することにある。

- 5 また、本発明の目的は、このような諸特性に優れた接着剤を用いて、半導体部品と配線基板とを接合させる工程を含む半導体部品パッケージの製造方法を提供することにある。

さらに、本発明の目的は、このような諸特性に優れた接着剤により接合された半導体部品パッケージを提供することにある。

- 10 本発明者は、前記従来技術の問題点を克服するために鋭意研究した結果、(a) 環状オレフィン系重合体及び(b) 主鎖中に芳香環の繰り返し単位を有する芳香族縮合系重合体からなる群より選ばれる少なくとも一種の数平均分子量が1,000~500,000の環構造含有熱可塑性重合体を基材高分子とすることにより、前記諸
15 特性に優れた半導体部品用の接着剤の得られることを見出した。

本発明で使用する環構造含有熱可塑性重合体は、金属や他の樹脂などとの密着性を向上させるために、官能基、特に極性基を有するものであることが望ましい。

- 20 本発明の接着剤は、通常、接着剤溶液または接着フィルム(シートを含む)の形態で使用される。本発明の接着剤は、充填剤を含有させることにより、線膨張係数を所望の範囲内に調整することができ、しかも接着剤からなる膜の強度を上げ、その結果、接着強度も上げることができる。また、本発明の接着剤は、導電性充填剤を含有させることにより、異方性導電材とすることができる。さらに、
25 本発明の接着剤は、エポキシ樹脂や石油樹脂などの低分子量成分を含有させることにより、粘度を所望の範囲に調整することができる

と共に、微細な凹凸を有する半導体部品や基板に対する接着性を高めることができる。本発明の接着剤は、温度サイクル試験及び高温高湿試験による評価基準を満足することができる。

5 本発明の接着剤は、環構造含有熱可塑性重合体を基材高分子とする接着剤であって、硬化剤を使用しないため、リペア性に優れている。また、本発明の接着剤は、硬化剤を使用しないことから、保存安定性に優れており、また、硬化時間が不要なため、生産性に優れている。すなわち、本発明の接着剤は、加熱溶解させて接着し、その後、冷却するか、あるいは有機溶媒の溶液を塗布し、乾燥させることにより接着させることができる。

10 本発明によれば、(a)環状オレフィン系重合体及び(b)主鎖中に芳香環の繰り返し単位を有する芳香族縮合系重合体からなる群より選ばれる少なくとも一種の数平均分子量が1,000~500,000の環構造含有熱可塑性重合体を基材高分子とする半導体部品接着剤が提供される。

また、本発明によれば、前記接着剤を製膜してなる半導体部品接着フィルムが提供される。

20 本発明によれば、前記接着剤の溶液またはフィルムを用いて、半導体部品と基板とを接合させてなる半導体部品パッケージが提供される。

また、本発明によれば、基板表面に前記接着フィルムを積層し、次いで、該接着フィルムの上に半導体部品を設置した後、環構造含有熱可塑性重合体のガラス転移温度以上の温度で加熱・加圧することにより接着し、しかる後、冷却することを特徴とする半導体部品25 パッケージの製造方法が提供される。

さらに、本発明によれば、基板表面に前記接着剤の溶液を塗布し

た後、溶媒を乾燥させて接着層を形成し、次いで、該接着層の上に半導体部品を設置した後、環構造含有熱可塑性重合体のガラス転移温度以上の温度で加熱・加圧することにより接着し、しかる後、冷却することを特徴とする半導体部品パッケージの製造方法が提供される。

< 図面の簡単な説明 >

図 1 は、半導体チップが組み込まれたテープキャリアパッケージ (TCP) と液晶パネルとを、異方性導電膜を介して接合・接着する方式を示す断面略図である。

< 発明を実施するための最良の形態 >

(半導体部品接着剤)

本発明で使用する半導体部品接着剤は、環状オレフィンの繰返し単位を含む環状オレフィン系重合体及び／または主鎖中に芳香環の繰返し単位を含有する芳香族縮合系重合体であって、数平均分子量が 1,000～500,000 の環構造含有熱可塑性重合体を基材高分子とする接着剤である。

〔環状オレフィン系重合体〕

本発明で用いる環状オレフィン系重合体は、重合体の全繰返し単位中に、環状オレフィン系単量体由来の繰返し単位を含有するものである。環状オレフィン系単量体としては、例えば、ソルボルネン環を有する脂環族系単量体、単環の環状オレフィン、環状共役ジエンなどが挙げられる。これらの環状オレフィン系単量体は、それぞれ単独で、あるいは 2 種以上を組み合わせ使用することがで

き、さらには、共重合可能な他の単量体と共重合させることができる。環状オレフィン系単量体由来の繰返し単位は、環状オレフィン単量体の繰返し単位だけではなく、該繰返し単位が変性されたものをも包含する。変性としては、水素添加反応や極性基含有不飽和化合物によるグラフト変性反応などが挙げられる。

環状オレフィン系単量体の結合様式は、主鎖中に環状構造を導入し得るものであれば特に限定されず、付加重合及び開環重合のいずれであってもよい。環状オレフィン系重合体としては、例えば、

- (1) ノルボルネン、エチリデンノルボルネン、ジシクロペンタジエン、
- 10 テトラシクロドデセンなどのノルボルネン環を有する脂環族系単量体の炭素－炭素不飽和結合を付加重合した付加重合体、
- (2) ノルボルネン環を有する脂環族系単量体と、 α -オレフィンなどの不飽和単量体とを付加共重合した付加共重合体、
- (3) シクロペンテン、シクロヘキセンなどの単環の環状オレフィンの
- 15 炭素－炭素不飽和結合を付加重合した付加重合体、
- (4) シクロヘキサジエンなどの環状共役ジエンを 1, 4-付加重合した付加重合体、
- (5) ノルボルネン環を有する脂環族系単量体を開環重合させた開環重合体、及び
- 20 (6) これらの水素添加物

などが挙げられる。

本発明で使用する環状オレフィン系重合体は、機械的特性、電気的特性、低吸水性が良好で、しかも耐熱性に優れていることが好ましい。これらの諸特性に優れている点で、環状オレフィン系重合体

25 としては、熱可塑性ノルボルネン系樹脂が好ましく、特に、ノルボルネン環を有する脂環族系単量体（すなわち、ノルボルネン系モノ

マー) を主成分とする付加 (共) 重合体、及びノルボルネン系モノマーの開環重合体の水素添加物などの熱可塑性飽和ノルボルネン系樹脂が好ましい。また、耐熱性などの諸特性に優れている点で、1, 3-シクロヘキサジエンなどの環状共役ジエンの1, 4-付加型重合体の水素添加物も好ましい。

環状オレフィン系重合体中の環状オレフィン系単量体由来の繰返し単位の割合は、モノマーの種類や所望の物性によって適宜定めることができるが、重合体の全繰返し単位を基準として、通常30モル%以上であることが、機械的特性、電気的特性、低吸水性、耐熱性などの観点から望ましい。例えば、ノルボルネン系モノマーとエチレンとの付加型共重合体の場合、ノルボルネン系モノマーの割合は、30モル%以上、好ましくは35モル%以上で、好ましい諸特性を有する共重合体を得ることができる。環状オレフィン系重合体中の環状オレフィン系単量体由来の繰返し単位は、高度の耐熱性が必要とされる場合には、好ましくは50モル%以上、より好ましくは70モル%以上、最も好ましくは80モル%以上である。この上限は、100モル%である。

環状オレフィン系重合体は、示差走査熱量計 (DSC) で測定したガラス転移温度 (T_g) が、通常100℃以上、好ましくは110℃以上、より好ましくは120℃以上であるものが望ましい。さらに高度の耐熱性が要求される場合には、環状オレフィン系重合体の T_g は、通常130℃以上、好ましくは140℃以上、より好ましくは150℃以上であることが望ましい。環状オレフィン系重合体は、高度の耐熱性が要求される場合、単量体の種類、重合方法、分子量、変性方法などを調整することにより、 T_g が200℃以上とすることができる。 T_g の上限は、通常、300℃程度である。環

状オレフィン系重合体の T_g が高いことにより、該重合体を接着剤として用いて半導体部品と基板との接合を行うと、耐熱性に優れた接着層を形成することができ、半導体部品パッケージの信頼性が大幅に向上する。 T_g が高すぎると、低温接着が困難となる。環状オレフィン系重合体のガラス転移温度が、上記範囲にあると、この接着剤で半導体部品パッケージを実装する際の温度範囲において、従来よりも低温接着が可能で、かつ、接着剤の耐熱性が優れて好適である。

本発明で使用する環状オレフィン系重合体の分子量は、ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー (GPC) により測定したポリスチレン換算の数平均分子量 (M_n) で表すと、1,000~500,000、好ましくは3,000~300,000、より好ましくは5,000~250,000の範囲であり、多くの場合、10,000~200,000の範囲である。

環状オレフィン系重合体の数平均分子量が過度に小さいと、接着層の強度が低下して、クラック等が発生する原因となり、逆に数平均分子量が過度に大きいと、重合体の粘度が大きすぎて、製膜性などが悪くなり好ましくない。よって、数平均分子量が上記範囲にあると、接着層の強度と、粘度及び加工性が適度にバランスされて好ましい。

環状オレフィン系重合体は、金属配線等との接着性向上などを目的として官能基（特に、極性基）を含有するものが好ましい。環状オレフィン系重合体に官能基を含有させる方法としては、環状オレフィン系重合体を変性する方法と、官能基を有する環状オレフィン系単量体を（共）重合する方法が挙げられる。

〔環状オレフィン系単量体〕

環状オレフィン系重合体の成分を構成する環状オレフィン系単量体は、炭素－炭素不飽和結合を有する環状の炭化水素化合物であれば特に限定はされないが、主なものには、(1) ノルボルネン環を有する脂環族系単量体（ノルボルネン系モノマー）、(2) 単環の環状オレフィン系単量体、及び(3) 環状共役ジエン系単量体が挙げられる。

(1) ノルボルネン環を有する脂環族系単量体

ノルボルネン環を有する脂環族系単量体は、特開平5－320268号公報や特開平2－36224号公報などに記載されているノルボルネン環を有する脂環族系単量体である。これらのノルボルネン環を有する脂環族系単量体は、それぞれ単独で、あるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。

ノルボルネン環を有する脂環族系単量体としては、(i) ノルボルネン、テトラシクロドデセン、これらのアルキル置換体などの重合反応に関与する炭素－炭素不飽和結合以外の不飽和結合を持たない単量体、(ii) エチリデンノルボルネン、ビニルノルボルネン、エチリデンテトラシクロドデセン、ジシクロペンタジエンなどの重合反応に関与する炭素－炭素不飽和結合以外の不飽和結合を持つ単量体、(iii) ジメタノテトラヒドロフルオレン、フェニルノルボルネンなどの芳香環を持つ単量体、(iv) メトキシカルボニルノルボルネン、メトキシカルボニルテトラシクロドデセンなどの極性基を有する単量体などを挙げることができる。より詳細には、以下の通りである。

(i) 重合反応に関与する炭素－炭素不飽和結合以外に不飽和結合を持たない単量体の具体例としては、例えば、ビシクロ[2. 2. 1]ヘプト－2－エン、5－メチルビシクロ[2. 2. 1]ヘプト

- 2-エン、5-エチルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、
 5-ブチルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、5-ヘキシ
 ルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、5-デシルビシクロ
 [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、などのビシクロ [2. 2. 1]
 5 ヘプト-2-エン誘導体（ノルボルネン類）；テトラシクロ [4.
 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] -ドデカ-3-エン、8-メチルテトラシ
 クロ [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] -ドデカ-3-エン、8-エチ
 ルテトラシクロ [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] -ドデカ-3-エン
 などのテトラシクロ [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] -ドデカ-3-
 10 エン誘導体（テトラシクロドデセン類）；トリシクロ [4. 3. 1^{2,5}.
 5. 0] -デカ-3-エン；5-シクロヘキシルビシクロ [2. 2.
 1] ヘプト-2-エン、5-シクロペンチルビシクロ [2. 2. 1]
 ヘプト-2-エンなどの環状置換基を有するビシクロ [2. 2. 1]
 ヘプト-2-エン誘導体、などが挙げられる。
- 15 (i i) 重合反応に関与する炭素-炭素不飽和結合以外に不飽和
 結合を持つ単量体の具体例としては、例えば5-エチリデンビシク
 ロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、5-ビニルビシクロ [2. 2.
 1] ヘプト-2-エン、5-プロペニルビシクロ [2. 2. 1] ヘ
 プト-2-エン、などの環外に不飽和結合を持つビシクロ [2. 2.
 20 1] ヘプト-2-エン誘導体；8-メチリデンテトラシクロ [4.
 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] -ドデカ-3-エン、8-エチリデンテト
 ラシクロ [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] -ドデカ-3-エン、8-
 ビニルテトラシクロ [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] -ドデカ-3-
 エン、8-プロペニルテトラシクロ [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0]
 25 -ドデカ-3-エン、などの環外に不飽和結合を持つテトラシクロ
 [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] -ドデカ-3-エン誘導体；トリシ

クロ [4. 3. 1^{2,5}. 0] -デカー 3, 7-ジエン; 5-シクロヘキセニルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、5-シクロペンテニルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エンなどの不飽和結合を持つ環状置換基を有するビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン誘導体、などが挙げられる。

(iii) 芳香環を有する単量体の具体例としては、例えば、5-フェニルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、テトラシクロ [6. 5. 1^{2,5}. 0^{1,6}. 0^{8,13}] トリデカー 3, 8, 10, 12-テトラエン (1, 4-メタノ-1, 4, 4a, 9a-テトラヒドロフルオレンともいう)、テトラシクロ [6. 6. 1^{2,5}. 0^{1,6}. 0^{8,13}] テトラデカー 3, 8, 10, 12-テトラエン (1, 4-メタノ-1, 4, 4a, 5, 10, 10a-ヘキサヒドロアントラセンともいう)、などが挙げられる。

(iv) 極性基 (官能基) を有する単量体の具体例としては、例えば、5-メトキシカルボニルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、5-エトキシカルボニルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、5-メチル-5-メトキシカルボニルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、5-メチル-5-エトキシカルボニルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、ビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-5-エニル-2-メチルプロピオネイト、ビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-5-エニル-2-メチルオクタネイト、ビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン-5, 6-ジカルボン酸無水物、5-ヒドロキシメチルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、5, 6-ジ (ヒドロキシメチル) ビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、5-ヒドロキシ-*i*-プロピルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、5, 6-ジカルボキシビシクロ [2. 2. 1] ヘプト

ー 2 - エン、などの酸素原子を含む置換基を有するビスクロ [2. 2. 1] ヘプトー 2 - エン誘導体； 8 - メトキシカルボニルテトラシクロ [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] - ドデカー 3 - エン、 8 - メチル - 8 - メトキシカルボニルテトラシクロ [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] - ドデカー 3 - エン、 8 - ヒドロキシメチルテトラシクロ [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] - ドデカー 3 - エン、 8 - カルボキシテトラシクロ [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] - ドデカー 3 - エン、などの酸素原子を含む置換基を有するテトラシクロ [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] - ドデカー 3 - エン誘導体； 5 - シアノビスクロ [2. 2. 1] ヘプトー 2 - エン、ビスクロ [2. 2. 1] ヘプトー 2 - エン - 5, 6 - ジカルボン酸イミドなどの窒素原子を含む置換基を有するビスクロ [2. 2. 1] ヘプトー 2 - エン誘導体、などが挙げられる。

なお、上記全てのノルボルネン環を有する脂環族系単量体に共通して、さらに炭素数 4 個以上のアルキル置換基を持つノルボルネン環を有する脂環族系単量体が挙げられる。または、これらの単量体は、それぞれ単独で、あるいは 2 種以上を組み合わせで使用することができる。

(2) 単環の環状オレフィン系単量体

単環の環状オレフィン系単量体は、炭素 - 炭素二重結合を環内に一つ有する環状化合物である。その具体例としては、シクロブテン、シクロペンテン、シクロヘキセン、シクロヘプテン、シクロオクテンなどを挙げることができる（特開昭 64 - 66216 号公報）。これらの単環の環状オレフィン系単量体は、それぞれ単独で、あるいは 2 種以上を組み合わせで用いることができる。

(3) 環状共役ジエン系単量体

環状共役ジエン系単量体は、環内に共役系炭素－炭素二重結合を有する環状化合物である。その具体例としては、1、3－シクロペンタジエン、1、3－シクロヘキサジエン、1、3－シクロヘプタジエン、1、3－シクロオクタジエンなどを挙げることができる（特開平7－258318号公報）。これらの環状共役ジエン系単量体は、それぞれ単独で、あるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。

環状オレフィン系単量体と共重合可能な不飽和単量体としては、エチレン、プロピレン、1－ブテン、4－メチル－1－ペンテンなどの炭素数2～12からなる α －オレフィン類；スチレン、 α －メチルスチレン、p－メチルスチレン、p－クロロスチレンなどのスチレン類；1，3－ブタジエン、イソプレンなどの鎖状共役ジエン；エチルビニルエーテル、イソブチルビニルエーテルなどのビニルエーテル類や一酸化炭素を挙げることができる。このような不飽和単量体としては、環状オレフィン系単量体と共重合が可能であるならば、特に上記のものに限定されるものではない。ノルボルネン環を有する脂環族系単量体とその他の不飽和単量体とを付加共重合させる場合には、その他の不飽和単量体として、前記の α －オレフィン類などのビニル化合物が好ましく、特にエチレンが好ましい。

〔芳香族縮合系重合体〕

本発明における芳香族縮合系重合体は、主鎖中に芳香環の繰り返し単位を有し、芳香環同士がヘテロ原子を含む単位構造で結合したものである。ヘテロ原子としては、特に限定されないが、例えば、酸素や硫黄が挙げられ、結合形態としては、例えば、エーテル結合やエステル結合がある。芳香族縮合系重合体の具体例としては、例

例えば、ポリフェニレンスルフィド、ポリフェニレンエーテル、ポリエーテルスルホン、ポリスルホンなどの芳香族ポリエーテル系重合体；液晶プラスチック、芳香族ポリエステル、ポリアリレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルケトンなどの芳香族ポリエステル；などが挙げられる。

これらの中でも、耐熱性、低吸湿性、誘電特性などの点で、芳香環とヘテロ原子の単純なエーテル結合から構成されるポリフェニレンスルフィド、ポリフェニレンエーテルなどの芳香族ポリエーテル系重合体が好ましく、芳香族ポリエステル系重合体のなかでも、単位構造に対する芳香環の含有量が多い液晶プラスチックのようなものが好ましい。特に、上記３種類の重合体が好ましいが、諸特性の点で、ポリフェニレンエーテル（PPE）が最も好ましい。

芳香族縮合系重合体の分子量は、GPCにより測定したポリスチレン換算の数平均分子量（ M_n ）で表すと、1,000～500,000、好ましくは3,000～300,000、より好ましくは5,000～250,000である。なお、GPCにより数平均分子量が測定できない芳香族縮合系重合体の場合には、熔融粘度などを分子量の指標として使用することができる。

芳香族縮合系重合体の T_g は、DSC測定にて、100～300℃、120～250℃、より好ましくは140～200℃である。芳香族縮合系重合体のガラス転移温度が、上記範囲にあると、この接着剤で半導体部品パッケージを実装する際の温度範囲において、従来よりも低温接着が可能で、かつ、接着剤の耐熱性が優れて好適である。

〔官能基を含有する環構造含有熱可塑性重合体〕

本発明で使用する環構造含有熱可塑性重合体は、金属との接着性を向上させたり、他の配合剤、樹脂等との相溶性を向上させたり、耐熱性を向上させる等の目的で、官能基（特に、極性基）を含有していることが好ましい。

本発明で使用する官能基含有環状オレフィン系重合体の極性基とは、金属（特に半導体チップ及び電極）や配線基板（絶縁樹脂、金属配線、電極）との接着性を向上させ得る官能基であれば特に限定されず、例えば、エポキシ基、カルボキシ基、ヒドロキシ基、エステル基、シラノール基、シリル基、アミノ基、ニトリル基、ハロゲン基、アシル基、スルホン基などが挙げられる。これらの官能基の中でも、少ない変性率で接着性の向上が可能であるなどの理由から、例えば、エポキシ基、酸無水物基、酸無水物の開環物基、カルボキシ基、ヒドロキシ基、シラノール基などの極性基が好ましい。

官能基を含有する環構造含有熱可塑性重合体は、環構造含有熱可塑性重合体に、例えば、下記の３種類の方法によって、官能基を導入して得ることができる。

- (1) 重合体に、官能基含有不飽和化合物をグラフト反応によって付加させる方法、
- (2) 重合体中の炭素－炭素不飽和結合に直接官能基を導入する方法、
- (3) 重合体の重合の際に、官能基を含有する単量体を共重合させる方法。

以下に、それぞれの官能基の導入方法の詳細を説明する。

(1) 官能基含有不飽和化合物のグラフト反応

官能基を含有する環構造含有熱可塑性重合体は、環構造含有熱可

塑性重合体を、有機過酸化物の存在下に、官能基含有不飽和化合物と反応させることにより得ることができる。官能基含有不飽和化合物としては、特に限定されないが、少量で接着性が向上するので、エポキシ基含有不飽和化合物、カルボキシ基含有不飽和化合物、
5 ヒドロキシ基含有不飽和化合物、シリル基含有不飽和化合物などが好ましい。

エポキシ基含有不飽和化合物としては、例えば、グリシジルアクリレート、グリシジルメタクリレート、p-スチリルカルボン酸グリシジル等の不飽和カルボン酸のグリシジルエステル類；エンドー
10 シスービスクロ〔2, 2, 1〕ヘプト-5-エン-2, 3-ジカルボン酸、エンドーシスービスクロ〔2, 2, 1〕ヘプト-5-エン-2-メチル-2, 3-ジカルボン酸等の不飽和ポリカルボン酸のモノグリシジルエステルあるいはポリグリシジルエステル類；アリ
ルグリシジルエーテル、2-メチルアリルグリシジルエーテル、o-
15 -アリルフェノールのグリシジルエーテル、m-アリルフェノールのグリシジルエーテル、p-アリルフェノールのグリシジルエーテル等の不飽和グリシジルエーテル類；2-(o-ビニルフェニル)
エチレンオキシド、2-(p-ビニルフェニル)エチレンオキシド、
2-(o-アリルフェニル)エチレンオキシド、2-(p-アリル
20 フェニル)エチレンオキシド、2-(o-ビニルフェニル)プロピレンオキシド、2-(p-ビニルフェニル)プロピレンオキシド、
2-(o-アリルフェニル)プロピレンオキシド、2-(p-アリル
フェニル)プロピレンオキシド、p-グリシジルスチレン、3,
4-エポキシ-1-ブテン、3, 4-エポキシ-3-メチル-1-
25 ブテン、3, 4-エポキシ-1-ペンテン、3, 4-エポキシ-3-
メチル-1-ペンテン、5, 6-エポキシ-1-ヘキセン、ビニ

ルシクロヘキセンモノオキシド、アリル-2,3-エポキシシクロペンチルエーテルなどが挙げられる。これらの中でも、特に高い反応率で該エポキシ基含有不飽和化合物がグラフト付加できるという点で、アリルグリシジルエステル類及びアリルグリシジルのエーテル類が好ましく、アリルグリシジルのエーテル類が特に好ましい。これらのエポキシ基含有不飽和化合物は、それぞれ単独で、あるいは2種以上を組み合わせる用いることができる。

カルボキシ基含有不飽和化合物としては、特開平5-271356号公報に記載の化合物などが挙げられ、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、 α -エチルアクリル酸等の不飽和カルボン酸；マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、エンドシス-ビスシクロ[2.2.1]ヘプト-5-エン-2,3-ジカルボン酸、メチル-エンドシス-ビスシクロ[2.2.1]ヘプト-5-エン-2,3-ジカルボン酸等の不飽和ジカルボン酸などが挙げられる。また、カルボキシ基含有不飽和化合物には、不飽和カルボン酸誘導体も含まれる。不飽和カルボン酸誘導体としては、例えば、不飽和カルボン酸の酸無水物、エステル、酸ハライド、アミド、イミドなどが挙げられ、具体的には、無水マレイン酸、クロロ無水マレイン酸、ブテニル無水コハク酸、テトラヒドロ無水フタル酸、無水シトラコン酸などの酸無水物；マレイン酸モノメチル、マレイン酸ジメチル、グリシジルマレエートなどのエステル；塩化マレニル、マレイミドなどが挙げられる。これらの中では、不飽和ジカルボン酸またはその酸無水物が好ましく、中でも無水マレイン酸やイタコン酸などの酸無水物が特に好ましい。

ヒドロキシ基含有不飽和化合物としては、例えば、アリルアルコール、2-アリル-6-メトキシフェノール、4-アリロキシ-2

ーヒドロキシベンゾフェノン、3-アリロキシ-1, 2-プロパンジオール、2-アリルジフェノール、3-ブテン-1-オール、4-ペンテン-1-オール、5-ヘキセン-1-オールなどが挙げられる。

- 5 シリル基含有不飽和化合物としては、例えば、クロロジメチルビニルシラン、トリメチルシリルアセチレン、5-トリメチルシリル-1, 3-シクロペンタジエン、3-トリメチルシリルアリルアルコール、トリメチルシリルメタクリレート、1-トリメチルシリロキシ-1, 3-ブタジエン、1-トリメチルシリロキシ-シクロペンテン、2-トリメチルシリロキシエチルメタクリレート、2-トリメチルシリロキシフラン、2-トリメチルシリロキシプロペン、アリロキシ-*t*-ブチルジメチルシラン、アリロキシトリメチルシランなどが挙げられる。
- 10

- 有機ケイ素不飽和化合物としては、トリメトキシビニルシラン、
15 トリエトキシビニルシラン、トリス(メトキシエトキシ)ビニルシランなどのトリスアルコキシビニルシランが好ましい。このような有機ケイ素不飽和化合物のアルコキシ基は、加水分解を受けてシラノール基を形成することができる。

- 有機過酸化物としては、特に限定されず、従来より不飽和化合物
20 のグラフト反応に用いられているようなものであれば使用可能である。有機過酸化物の具体例としては、有機ペルオキシド、有機ペルエステルなどが好ましく使用される。このような有機過酸化物の具体例としては、ベンゾイルペルオキシド、ジクロロベンゾイルペルオキシド、ジキシルペルオキシド、ジ-*t*-*tert*-ブチルペルオキシド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ペルオキシドベンゾエート)
25 ヘキシン-3, 1, 4-ビス(*t*-*tert*-ブチルペルオキシイソブ

ロピル) ベンゼン、ラウロイルペルオキシド、tert-ブチルペ
ルアセテート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(tert-ブチル
ペルオキシ) ヘキシン-3, 2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(tert-
ブチルペルオキシ) ヘキサン、tert-ブチルペルベンゾエー
5 ト、tert-ブチルペルフェニルアセテート、tert-ブチル
ペルイソブチレート、tert-ブチルペル-sec-オクトエー
ト、tert-ブチルペルピパレート、クミルペルピパレート、及
びtert-ブチルペルジエチルアセテートを挙げることができる。

さらに、本発明においては、有機過酸化物としてアゾ化合物を使
10 用することもできる。アゾ化合物の具体例としては、アゾビスイソ
ブチロニトリル及びジメチルアゾイソブチレートを挙げることがで
きる。

これらの中でも、有機過酸化物として、ベンゾイルペルオキシド、
ジクミルペルオキシド、ジ-tert-ブチルペルオキシド、2,
15 5-ジメチル-2, 5-ジ(tert-ブチルペルオキシド) ヘキ
シン-3, 2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(tert-ブチルペル
オキシ) ヘキサン、1, 4-ビス(tert-ブチルペルオキシイ
ソプロピル) ベンゼン等のジアルキルペルオキシドが好ましく用い
られる。

20 これらの有機過酸化物は、それぞれ単独で、あるいは2種以上を
組み合わせて用いることができる。有機過酸化物の使用割合は、反
応時の仕込み割合で未変性の環構造含有熱可塑性重合体100重量
部に対して、通常0.001~30重量部、好ましくは0.01~
20重量部、より好ましくは0.1~10重量部の範囲である。有
25 機過酸化物の使用量がこの範囲にあるとき、官能基含有不飽和化合
物の反応率、得られた変性重合体の吸水率、誘電特性などの諸物性

が高度にバランスされ好適である。

グラフト変性反応は、特に限定はなく、常法に従って行うことができる。反応温度は、通常 0 ~ 400 °C、好ましくは 60 ~ 350 °C である。反応時間は、通常 1 分 ~ 24 時間、好ましくは 30 分 ~ 10 時間の範囲である。反応終了後は、メタノール等の貧溶媒を多量に反応系に添加してポリマーを析出させ、濾別洗浄後、減圧乾燥等により得ることができる。

(2) 炭素-炭素不飽和結合の直接変性

官能基を含有する環構造含有熱可塑性重合体は、環構造含有熱可塑性重合体中にオレフィン性炭素-炭素不飽和結合を有するものの場合には、該不飽和結合を変性して官能基を付加したり、該不飽和結合に官能基を有する化合物を結合させたりして、官能基を導入することができる。

官能基の導入方法に関しては、特開平 6-172423 号公報に記載されているような方法を用いることができる。具体的には、オレフィン性不飽和結合の酸化による方法、分子内に 1 つ以上の官能基を含有する化合物のオレフィン性不飽和結合への付加反応による方法、及びその他の方法によって、エポキシ基やカルボキシル基、ヒドロキシル基等の官能基を導入する方法が挙げられる。

(3) 官能基含有単量体の共重合

本発明で使用する官能基含有単量体としては、特に限定されないが、前述の単量体の説明の中の (iv) の極性基を有する単量体を挙げるることができる。これらの中でも、共重合のしやすいものとして、5-ヒドロキシメチルビスクロ[2.2.1]ヘプト-2-エン、5-ヒドロキシ-*i*-プロピルビスクロ[2.2.1]ヘプト-2-エン、5-メトキシカルボニルビスクロ[2.2.1]ヘプ

ト-2-エン、8-メトキシカルボニルテトラシクロ [4. 4. 0. 1^{2,5}. 1^{7,10}.] -ドデカ-3-エン、5, 6-ジカルボキシビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン、などのヒドロキシ基、カルボキシル基またはエステル基を含有する単量体が好ましい。重合触媒及び重合方法は、ノルボルネン系単量体の重合触媒及び重合方法を用いることができる。

以上の中でも、官能基の導入方法としては、容易な反応条件で変性を実施することができ、高い変性率で極性基を導入することが容易である等の理由により、グラフト変性法が好ましく、グラフト反応する官能基含有不飽和化合物の種類としては、前述の理由によりエポキシ基、無水マレイン酸、及び無水イタコン酸等の分子内に炭素-炭素不飽和結合を有するジカルボン酸無水物基を持った不飽和化合物が特に好ましい。

(4) 官能基導入率

官能基を含有する環構造含有熱可塑性重合体の官能基導入率（変性率）は、使用目的に応じて適宜選択されるが、重合体中の総モノマー単位数を基準として、通常0. 1～100モル%、好ましくは0. 5～70モル%、より好ましくは1～50モル%の範囲である。官能基の導入率がこの範囲にあるとき、金属との接着強度、耐熱性、機械的強度、吸水率、誘電特性が高度にバランスされ、好適である。官能基としては、前述のとおり、極性基が好ましい。

官能基導入率（変性率：モル%）は、下式（1）で表される。

$$\text{官能基導入率} = (X / Y) \times 100 \quad (1)$$

X : (a) グラフトモノマー変性残基全モル数、あるいは

(b) 不飽和結合含有モノマーの全モル数×不飽和結合への官能基付加率、あるいは

(c) 官能基含有モノマーの全モル数。

(いずれも $^1\text{H-NMR}$ で測定する。)

Y: ポリマーの総モノマー単位数 (ポリマーの重量平均分子量 /
モノマーの平均分子量)

5

(接着性樹脂組成物)

本発明の接着剤は、上記環構造含有熱可塑性重合体を基材高分子とする接着剤であり、充填剤を含有する樹脂組成物であることが望ましい。

10 [充填剤]

充填剤は、主に、(1) 接着剤の線膨張係数と半導体部品及び基板の線膨張係数の値を近づけて剪断応力を低減させる、(2) 半導体部品の電極バンプと基板の電極を導通させる、(3) 半導体素子や基板と接着剤の接着強度(凝集破壊強度)を向上させる、といった目的で配合される。

15

充填剤の種類は、上記要求を満たすものであれば特に限定されないが、具体的には例えば、(1) 及び (3) の目的では、従来から半導体部品の樹脂封止材料に使用されてきた各種充填剤を用いることができる。それらの中でも、線膨張係数の小さい充填剤として無機フィラーが好ましく、線膨張係数が特に小さい熔融シリカ(非晶質シリカ、石英ガラスと同義)がより好ましい。前記(2)の目的では、従来、異方性導電膜に使用されてきた導電性粒子(導電性フィラー)が挙げられる。

20

(1) 充填剤(非導電性充填剤、特に無機フィラー)

25 非導電性の充填剤は、特に限定されず、例えば、従来よりエポキシ樹脂接着剤や封止材に用いられているものを使用することができ

る。充填剤の具体例としては、例えば、シリカ、ケイ藻土、アルミナ、酸化チタン、酸化マグネシウム、軽石粉、軽石バルーン、塩基性炭酸マグネシウム、ドロマイト、硫酸カルシウム、チタン酸カリウム、硫酸バリウム、亜硫酸カルシウム、タルク、クレー、マイカ、アスベスト、ガラス繊維、ガラスフレーク、ガラスビーズ、ケイ酸カルシウム、モンモリロナイト、ベントナイト、グラファイト、アルミニウム粉、硫化モリブデン、ボロン繊維、炭化ケイ素繊維、ポリエチレン繊維、ポリプロピレン繊維、ポリエステル繊維、ポリアミド繊維などが挙げられる。これら充填剤の中でも、特に、耐熱性、低吸水率、誘電特性、低不純物性等に優れる理由から、無機フィラーが好ましく、特にシリカが好ましい。

非導電性の充填剤（特に、無機フィラー）は、環構造含有熱可塑性重合体 100 重量部に対して、通常 1 ～ 100 重量部、好ましくは 5 ～ 70 重量部、より好ましくは 10 ～ 50 重量部の割合で使用する。充填剤を配合することにより、接着剤の線膨張係数を所望の範囲に調整することができると共に、接着剤層の強度（膜強度）を上げる作用効果があり、それによって、接着強度も向上する。充填剤の配合割合が過小であると、添加効果が小さく、逆に、過大であると、接着力が低下する。ただし、高度の接着強度が要求されない用途の場合には、前記範囲よりも多量の充填剤を含有させることも可能であり、それによって、熱伝導性などを向上させることもできる。

（２）導電性粒子（導電性フィラー）

導電粒子の種類については、特に限定されず、基材高分子及び被着体の種類により適宜選択される。具体例としては「工業調査会：エレクトロニクス実装技術基礎講座、第４巻、実装組立技術、第６

章」に記載の導電性フィラーなどが挙げられる。

導電性粒子としては、例えば、①ニッケル、アルミニウム、銀、銅、錫、鉛、金、亜鉛、白金、コバルト、及びこれらの合金（例えば、ハンダ）などの金属粒子、②凝集金属粒子、③熔融金属粒子、
5 ④導電性カーボンプラックやカーボン単繊維などの導電性カーボン系粒子、⑤スチレン系、フェノール系、エポキシ系樹脂粒子あるいはこれらの樹脂粒子とハンダなどの複合粒子にNi、Auなどの金属メッキ処理をした金属被覆樹脂粒子、⑥ポリウレタン系樹脂などの柔軟性のある樹脂に金属粒子を分散させて複合化した複合樹脂粒子、
10 及び⑦マイクロカプセル型導電性粒子などが挙げられる。

マイクロカプセル型導電性粒子は、導電性粒子の表面に絶縁性樹脂層が形成されたものであり、例えば、(i) ニッケル、アルミニウム、銀、銅、錫、鉛、金、亜鉛、白金、コバルト、及びこれらの合金（例えば、はんだ）などの金属粒子の表面に絶縁性樹脂を被覆したもの、
15 (ii)樹脂粒子にNi、Auなどの金属メッキ処理をした金属被覆樹脂粒子の表面に絶縁性樹脂を被覆したもの、(iii)樹脂と金属粒子とを複合化した複合樹脂粒子の表面に絶縁性樹脂を被覆したものなどを挙げることができる。絶縁性樹脂としては、熱可塑性樹脂と熱硬化性樹脂とがある。マイクロカプセル型導電性フィラーの製造方法として
20 しては、特に限定されず、公知の方法を採用することができる。具体的には、球形の芯物質樹脂上に導電性の中間層を設け、その上に絶縁性熱可塑性樹脂をコーティングする方法や、球形の導電性微粒子表面に絶縁性熱可塑性樹脂をコーティングする方法、プラズマ重合またはプラズマCVD重合により、導電性粒子表面に熱可塑性樹脂または熱硬化性樹脂の絶縁膜を形成する方法、モノマーを導電性
25 微粒子表面で i n s i t u 重合させてポリマー化し、コーティン

グする方法などが挙げられる。絶縁性樹脂としては、例えば、アクリル樹脂、スチレン樹脂、アクリル／スチレン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリウレタン樹脂などの熱可塑性樹脂；エポキシ／アミン系の硬化物、マレイミド／アミン系の硬化物、ジビニルベンゼン重合体などの熱硬化性樹脂などがある。これらの絶縁性樹脂は、チップと基板の熱圧着温度に耐え得る耐熱性を有するものが好ましい。絶縁性樹脂からなる被覆層の厚みは、 $3\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。絶縁性樹脂層の膜厚の下限は、製造法にもよるが、通常、 $0.05\text{ }\mu\text{m}$ 程度である。

- 10 導電性粒子の形状は、特に限定されはないが、球状、粒状、または扁平状であることが、加熱加圧により端子間で面接触効果を十分に得る上で好ましい。本発明で使用される導電性フィラーの平均粒径は、使用目的に応じて適宜選択されればよく、 $(\text{長径} + \text{短径}) / 2$ の平均粒径で、通常 $0.1 \sim 30\text{ }\mu\text{m}$ 、好ましくは $1 \sim 20\text{ }\mu\text{m}$ 、
15 より好ましくは $5 \sim 15\text{ }\mu\text{m}$ の範囲である。

これらの導電性粒子は、基材高分子の環構造含有熱可塑性重合体に均一に分散しやすいもの、半導体部品の電極や基板の電極の材料と密着性に優れるものが好ましい。

- これらの導電性粒子は、それぞれ単独で、あるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。導電性粒子の配合割合は、使用目的に応じて適宜選択されるが、環構造含有熱可塑性重合体100重量部に対して、通常 $1 \sim 100$ 重量部、好ましくは $2 \sim 70$ 重量部、より好ましくは $3 \sim 50$ 重量部の範囲であるときに、誘電特性、接着性、及び長期信頼性が高度にバランスされて好適である。導電性
20 粒子の配合割合は、多くの場合 $5 \sim 30$ 重量部である。導電性粒子の配合割合が過小であると、端子間接合が不十分となり、特に微細

ピッチ化に対応することが困難となる。導電性粒子の配合割合が過大であると、接着力が低下したり、横方向の絶縁性が損なわれるおそれが生じる。

電子部品の小型化や高密度実装が進みにつれて、端子間隔が縮小してきており、電極の微細ピッチ化への対応と接続部の高信頼性の確保が求められている。ところが、従来の異方性導電材では、微細ピッチ化への対応を充分に行うことができない。微細ピッチ化の進展により、例えば、ビームリードタイプの半導体チップの場合、ビームリードの幅は50～100 μ mで、リード間隔も50～100 μ m程度となっている。このような微細ピッチ化した電子部品に対し、従来の異方性導電材を用いてバンプ接合する場合、バンプ相互間の絶縁性を確保することが困難である。これに対して、本発明の接着剤は、基材高分子の誘電特性に優れているため、これらの要求に応えることができる。また、導電性粒子として、マイクロカプセル型導電性粒子などを使用することにより、導電性粒子の高充填が可能となり、これによっても、電極の微細ピッチ化へ対応することができるようになる。

図1に、異方性導電膜を用いた半導体部品と基板との接合の機構に関する説明図を示す。樹脂（接着剤）1中にマイクロカプセル型導電性フィラー2を分散した異方性導電材料を用いて、TCP3のリード4上から異方性導電膜を形成する。これを液晶パネル6の電極6側と加熱・圧着すると、両電極間に存在するマイクロカプセル型導電性フィラー2が潰されて、両電極間を導通させる。

〔配合剤〕

本発明の接着剤には、以下に記載するような配合剤が配合されていてもよい。

(1) 難燃剤

- 5 難燃剤は、必須成分ではないが、特にCPUやDRAMなどのLSIチップを接着する場合には、添加するのが好ましい。難燃剤としては、特に制約はないが、硬化剤によって、分解、変性、変質しないものが好ましく、通常ハロゲン系難燃剤が用いられる。

- 10 ハロゲン系難燃剤としては、塩素系及び臭素系の種々の難燃剤が使用可能であるが、難燃化効果、成形時の耐熱性、樹脂への分散性、樹脂の物性への影響等の面から、ヘキサブロモベンゼン、ペンタブロモエチルベンゼン、ヘキサブロモビフェニル、デカブロモジフェニル、ヘキサブロモジフェニルオキシサイド、オクタブロモジフェニルオキシサイド、デカブロモジフェニルオキシサイド、ペンタブロモシクロヘキサン、テトラブロモビスフェノールA、及びその誘導体〔例
- 15 えば、テトラブロモビスフェノールA-ビス(ヒドロキシエチルエーテル)、テトラブロモビスフェノールA-ビス(2,3-ジブロモプロピルエーテル)、テトラブロモビスフェノールA-ビス(ブロモエチルエーテル)、テトラブロモビスフェノールA-ビス(アリルエーテル)等〕、テトラブロモビスフェノールS、及びその誘導体〔例えば、テトラブロモビスフェノールS-ビス(ヒドロキシエチルエーテル)、テトラブロモビスフェノールS-ビス(2,3-ジブロモプロピルエーテル)等〕、テトラブロモ無水フタル酸、及びその誘導体〔例えば、テトラブロモフタルイミド、エチレンビス
- 20 テトラブロモフタルイミド等〕、エチレンビス(5,6-ジブロモノルボルネン-2,3-ジカルボキシイミド)、トリス-(2,3

ージブロモプロピル-1)-イソシアヌレート、ヘキサクロロシクロペンタジエンのディールス・アルダー反応の付加物、トリブロモフェニルグリシジルエーテル、トリブロモフェニルアクリレート、エチレンビストリブロモフェニルエーテル、エチレンビスペンタブ
5 ーロモフェニルエーテル、テトラデカブロモジフェノキシベンゼン、臭素化ポリスチレン、臭素化ポリフェニレンオキサイド、臭素化エポキシ樹脂、臭素化ポリカーボネート、ポリペンタブロモベンジルアクリレート、オクタブロモナフタレン、ヘキサブロモシクロドデカン、ビス(トリブロモフェニル)フマルアミド、N-メチルヘキ
10 サブロモジフェニルアミン等を使用するのが好ましい。

難燃剤の添加量は、環構造含有熱可塑性重合体100重量部に対して、通常3～150重量部、好ましくは10～140重量部、特に好ましくは15～120重量部である。

難燃剤の難燃化効果をより有効に発揮させるための難燃助剤として、例えば、三酸化アンチモン、五酸化アンチモン、アンチモン酸
15 ナトリウム、三塩化アンチモン等のアンチモン系難燃助剤を用いることができる。これらの難燃助剤は、難燃剤100重量部に対して、通常1～30重量部、好ましくは2～20重量部の割合で使用する。

これらの難燃剤は、特に基材高分子のガラス転移温度(T_g)が高い場合には、同時に、可塑剤としての役割を果たさせるために添加すること
20 することもできる。例えば、T_gが300℃の基材高分子100重量部に、リン系難燃剤を15重量部程度添加して、T_gを200℃程度に低下させることができる。

(2) 低分子量樹脂

25 本発明においては、例えば、接着剤の基材高分子(すなわち、環構造含有熱可塑性重合体)の加熱溶融時の粘度特性の向上を目的と

して、低分子量樹脂を配合することができる。このような低分子量樹脂を配合することにより、接着剤の粘度特性を向上することに加えて、半導体部品や配線基板などの微細な凹凸面に対する接着性が良好となる。また、このような低分子量樹脂を配合することにより、
5 温度サイクル試験及び高温高湿試験による評価基準を満足させることができる。

低分子量樹脂としては、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂（ポリアミド酸）、ビスマレイミド・トリアジン樹脂、フェノール樹脂、ノボラック樹脂などの熱硬化性樹脂；石油樹脂などを挙げることができる。これらの中でも、エポキシ樹脂が好ましい。ただし、本発明
10 では、これらの熱硬化性樹脂は、硬化させることなく使用する。

低分子量樹脂は、環構造含有熱可塑性重合体 100 重量部に対して、通常 1 ～ 50 重量部、好ましくは 3 ～ 40 重量部、より好ましくは 5 ～ 30 重量部の割合で使用する。

15 (3) その他の重合体成分

本発明においては、接着剤中に、必要に応じて、ゴム質重合体やその他の熱可塑性樹脂を配合することができる。

ゴム質重合体は、常温（25℃）以下のガラス転移温度を持つ重合体であって、通常のゴム状重合体及び熱可塑性エラストマーが含まれる。ゴム質重合体のムーニー粘度（ ML_{1+4} ，100℃）は、使
20 用目的に応じて適宜選択され、通常 5 ～ 200 である。

ゴム状重合体としては、例えば、エチレン- α -オレフィン系ゴム質重合体；エチレン- α -オレフィン-ポリエン共重合体ゴム；エチレン-メチルメタクリレート、エチレン-ブチルアクリレート
25 などのエチレンと不飽和カルボン酸エステルとの共重合体；エチレン-酢酸ビニルなどのエチレンと脂肪酸ビニルとの共重合体；アク

リル酸エチル、アクリル酸ブチル、アクリル酸ヘキシル、アクリル酸 2-エチルヘキシル、アクリル酸ラウリルなどのアクリル酸アルキルエステルの重合体；ポリブタジエン、ポリソブレン、スチレン-ブタジエンまたはスチレン-イソプレンのランダム共重合体、ア
5 クリロニトリル-ブタジエン共重合体、ブタジエン-イソブレン共重合体、ブタジエン-（メタ）アクリル酸アルキルエステル共重合体、ブタジエン-（メタ）アクリル酸アルキルエステル-アクリロニトリル共重合体、ブタジエン-（メタ）アクリル酸アルキルエステル-アクリロニトリル-スチレン共重合体などのジエン系ゴム；
10 ブチレン-イソブレン共重合体などが挙げられる。

熱可塑性エラストマーとしては、例えば、スチレン-ブタジエンブロック共重合体、水素化スチレン-ブタジエンブロック共重合体、スチレン-イソプレンブロック共重合体、水素化スチレン-イソプレンブロック共重合体などの芳香族ビニル-共役ジエン系ブロック
15 共重合体、低結晶性ポリブタジエン樹脂、エチレン-プロピレンエラストマー、スチレングラフトエチレン-プロピレンエラストマー、熱可塑性ポリエステルエラストマー、エチレン系アイオノマー樹脂などを挙げることができる。これらの熱可塑性エラストマーの中でも、水素化スチレン-ブタジエンブロック共重合体、水素化スチレン-イソプレンブロック共重合体などが好ましく、より具体的には、
20 特開平 2-133406 号公報、特開平 2-305814 号公報、特開平 3-72512 号公報、特開平 3-74409 号公報などに記載されているものを挙げることができる。

その他の熱可塑性樹脂としては、例えば、低密度ポリエチレン、
25 高密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン、エチレン-エチルアクリレート共重合体、エチレン-酢酸

ビニル共重合体、ポリスチレン、ポリフェニレンスルフィド、ポリフェニレンエーテル、ポリアミド、ポリエステル、ポリカーボネート、セルローストリアセテートなどが挙げられる。

これらのゴム状重合体やその他の熱可塑性樹脂は、それぞれ単独
5 で、あるいは2種以上を組み合わせ用いることができ、その配合量は、本発明の目的を損なわない範囲で適宜選択されるが、接着材料の特性を損なわせないためには、環構造含有熱可塑性重合体100重量部に対して、30重量部以下であるのが好ましい。

(4) その他の配合剤

10 本発明の接着剤には、必要に応じて、耐熱安定剤、耐候安定剤、レベリング剤、帯電防止剤、スリップ剤、アンチブロッキング剤、防曇剤、滑剤、染料、顔料、天然油、合成油、ワックスなどのその他の配合剤を適量添加することができる。

具体的には、例えば、テトラキス〔メチレン-3(3, 5-ジ-
15 t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート〕メタン、 β -(3, 5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸アルキルエステル、2, 2'-オキザミドビス〔エチル-3(3, 5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート〕などのフェノール系酸化防止剤；トリスノニルフェニルホスファイト、トリス(2, 4-ジ-t-ブチルフェニル)ホスファイト、
20 トリス(2, 4-ジ-t-ブチルフェニル)ホスファイト等のリン系安定剤；ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸カルシウム、12-ヒドロキシステアリン酸カルシウム等の脂肪酸金属塩；グリセリンモノステアレート、グリセリンモノラウレート、グリセリンジステアレート、
25 ペンタエリスリトールモノステアレート、ペンタエリスリトールジステアレート、ペンタエリスリトールトリステアレート等

の多価アルコール脂肪酸エステル；合成ハイドロタルサイト；アミン系の帯電防止剤；フッ素系ノニオン界面活性剤、特殊アクリル樹脂系レベリング剤、シリコーン系レベリング剤など塗料用レベリング剤；シランカップリング剤、チタネートカップリング剤、アルミニウム系カップリング剤、ジルコアルミネートカップリング剤等のカップリング剤；可塑剤；カーボンブラックなどの顔料や染料などの着色剤；などを挙げることができる。

（接着剤の形態）

10 半導体部品接着剤は、前記の環構造含有熱可塑性重合体を基材高分子として含有する接着剤であり、該基材高分子の他に充填剤（無機フィラーや導電性フィラー）、低分子量樹脂などの各種配合剤を含有することができる。

本発明の接着剤のひとつの形態は、これらの成分が有機溶媒中に均一に溶解ないしは分散した接着剤溶液である。溶媒としては、例えば、トルエン、キシレン、エチルベンゼンなどの芳香族炭化水素； n -ペンタン、ヘキサン、ヘプタンなどの脂肪族炭化水素；シクロヘキサンなどの脂環式炭化水素；クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、トリクロロベンゼンなどのハロゲン化炭化水素；などを挙げることができる。

溶媒は、環構造含有熱可塑性重合体及び必要に応じて配合する各成分を均一に溶解ないしは分散するに足りる量比で用いられるが、通常は、固形分濃度が1～80重量％であり、好ましくは5～60重量％、より好ましくは10～50重量％である。

25 本発明の接着剤の他の形態は、接着フィルム（シートを含む）である。半導体部品接着フィルムは、環構造含有熱可塑性重合体及び

必要に応じて配合する各成分を含む接着剤（組成物を含む）をキャスティング法、溶融押出法等を用いて製膜することにより製造することができる。より具体的には、接着剤を平滑面上に流延または塗布し、乾燥等により溶剤を除去し、平滑面から剥離してフィルムを得る。乾燥により溶媒を除去する場合は、急速な乾燥により発泡することのない方法を選択することが好ましく、例えば、低温である程度溶媒を揮発させた後、温度を上げて溶媒を十分に揮発させるようにすればよい。

平滑面としては、鏡面処理した金属板や樹脂製のキャリアフィルム等を用いることができる。樹脂製のキャリアフィルムを用いる場合、キャリアフィルム素材の耐溶剤性や耐熱性に注意して、使用する溶媒や乾燥条件を決める。接着フィルムは、一般に、 $1\mu\text{m}\sim 1\text{mm}$ 程度の厚みを有する。

15 (接着方法)

本発明の接着剤を用いて、半導体部品と基板を接着する方法としては、例えば、(1) 基板表面に該接着剤溶液を塗布した後、溶媒を乾燥させて接着剤層を形成させ、該接着剤層に半導体部品を加熱・圧着させる方法、及び(2) 基板表面に該接着剤から作製した接着性フィルムを積層し、さらにその上に半導体部品を設置した後に、環構造含有熱可塑性重合体のガラス転移温度以上の温度で加熱・圧着し、しかる後に冷却する方法が挙げられる。

(1) 接着剤を塗布する方法

接着剤を塗布する場合は、半導体部品をフリップチップボンディングする際に、該半導体部品の電極が接続される基板上の全ての電極を覆う状態で接着剤をコートする。接着剤のコート方法は、特に

限定されないが、基板上の限られた範囲に接着剤を均一な厚みで塗布できる方法として、例えば、スクリーン印刷、ディスペンサーによる方法、スピンコートによる方法等が好ましい。

5 また、接着剤の塗布は、基板側でなく、半導体チップの接着面でも構わない。塗布された接着剤は、加熱乾燥により溶媒が除去される。乾燥後の接着剤層は、半導体部品が実装された時の半導体素子と基板の隙間よりも厚くなっているのが好ましい。

10 以上のように形成された基板上の接着剤層上に、半導体部品を、環構造含有熱可塑性重合体のガラス転移温度以上の温度にて加熱・加圧することによって接着する。この際、該半導体部品の電極と基板の電極は完全に接触するか、導電性粒子を介して接触する。さらに接着剤層が半導体チップと基板の隙間に完全に充填することで、素子と基板の接着、及び電極の保護という2つの機能を発揮することができる。

15 (2) 接着フィルムを使用する方法

接着フィルムを使用する方法は、塗布により形成された接着剤層の代わりに、前述の方法により予め形成した接着用フィルムを用いる。接着フィルムを接着の際に半導体部品と基板の間に挟み、ガラス転移温度以上の温度で加熱加圧することにより接着する。これ以外
20 の方法は、塗布法による接着方法と同一である。

(半導体部品パッケージ)

前述の方法で、半導体部品と基板とがフリップチップボンディングされたものは、さらにマザーボードのプリント配線板に実装できるような電極を設置し、半導体パッケージやマルチ・チップ・モジュールとして、コンピュータや情報通信機器などに使用される。
25

< 実施例 >

以下に、実施例、比較例、及び合成例を挙げて本発明を具体的に説明する。これらの実施例等において、「部」及び「%」は、特に断りのない限り、重量基準である。

5 各種物性の測定法は、次のとおりである。

(1) ガラス転移温度 (T_g) は、示差走査熱量法 (DSC法) により測定した。

(2) 数平均分子量 (M_n) 及び重量平均分子量 (M_w) は、特に記載しない限り、トルエンを溶媒とするゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー (GPC) によるポリスチレン換算値として測定した。

(3) 主鎖の水素添加率、ポリマーの変性率、及び共重合比率は、 $^1\text{H-NMR}$ により測定した。変性率は、前記式 (1) により算出した。

15 (4) 誘電率及び誘電正接は、JIS C 6481 に準じて、1 MHz において測定した。

(5) 接着強度は、接着剤を用いて、短冊状のガラスエポキシ基板同士を 190℃ の加熱条件で接合 (接着) した。接合面積は、20 × 20 mm である。この接着サンプルを用いて、引張試験機によって、剪断強度を測定して、接着強度として表した。

(6) 温度サイクル試験 (TCT) は、前記接着サンプルを用い、-55℃ (30 min) → 室温 (5 min) → 150℃ (30 min) → 室温 (5 min) の温度サイクルを 300 回繰り返すことで温度衝撃を加え、不良発生 (剥離) の有無を調べた。

25 プレッシャークッカー試験 (PCT) は、湿度 100%、105℃ の環境下に 300 時間放置し、不良発生の有無を調べた。

いずれの場合も、以下の基準で評価した。

○：不良発生あり、

×：不良発生なし。

[合成例 1]

- 5 六塩化タングステン、トリイソブチルアルミニウム、イソブチルアルコールを重合触媒として用い、公知の方法により 8-エチルテトラシクロ [4. 4. 1^{2,5}. 1^{7,10}. 0] -3-ドデセン（以下、ETDと略す）を開環重合した。得られた開環重合体を、ニッケルアセチルアセトナートとトリイソブチルアルミニウムを用いて、公
- 10 知の方法により水素添加し、ETDの開環重合体水素添加物（水素化率 $\geq 99\%$ 、 $T_g = 138^\circ\text{C}$ 、 $M_n = 18,500$ 、 $M_w = 31,600$ ）を得た。この水素添加物 100部に対して、アリルアルコール 15部、ジクミルペルオキシド 5部、tert-ブチルベンゼン 300部を混合し、オートクレーブ中にて、 150°C 、4時間反応
- 15 を行った後、反応液を 300部のメタノール中に注ぎ、凝固させた。凝固物を乾燥し、アルコール変性ポリマー（A）を得た。その合成結果を表 1 に示した。

[合成例 2]

- 20 アリルアルコール 15部をトリメトキシビニルシラン 20部に変える以外は、合成例 1 と同様にしてシラン変性ポリマー（B）を得た。このシラン変性ポリマーは、加水分解されると、シラノール基を持つようになる。その合成結果を表 1 に示した。

[合成例 3]

- 25 アリルアルコール 15部を無水マレイン酸 2部に変える以外は、合成例 1 と同様にして無水マレイン酸変性重合体を得た。得られた重合体 100部に対して、水 1部及びトリエチルアミン 1部を加え

て、150℃で1時間加水分解反応を行い、マレイン酸変性重合体(C)を得た。合成結果を表1に示した。

[合成例4]

5 アリルアルコール15部をアリルグリシジルエーテル(AGE)15部に変える以外は、合成例1と同様にしてエポキシ変性重合体(D)を得た。合成結果を表1に示した。

[合成例5]

10 重合触媒として $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)_2\text{Cl}_2$ 及びエチルアルミニウムセスキクロライド $[\text{Al}(\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{Cl}]_{1.5}$ を用いて、公知の方法によりテトラシクロ $[\text{4.4.1}^{2,5}.\text{1}^{7,10}.\text{0}]$ -3-ドデセン(以下、TCDと略す)とエチレンとを重合して付加共重合体を得た。得られた共重合体100部に対して、アリルアルコール15部、ジクミルペルオキシド5部、tert-ブチルベンゼン300部を混合し、オートクレーブ中にて150℃、4時間反応を行った後、
15 反応液を上記と同様にして凝固、乾燥し、アルコール変性重合体(E)を得た。合成結果を表1に示した。

[合成例6]

20 アリルアルコール15部をトリメトキシビニルシラン20部に変える以外は、合成例5と同様にしてシラン変性重合体(F)を得た。合成結果を表1に示した。

[合成例7]

25 アリルアルコール15部を無水マレイン酸2部に変える以外は、合成例5と同様にして無水マレイン酸変性重合体を得た。得られた重合体100部に対して、水1部及びトリエチルアミン1部を加えて、150℃で1時間加水分解反応を行い、マレイン酸変性重合体(G)を得た。合成結果を表1に示した。

[合成例 8]

アリルアルコール 15 部をアリルグリシジルエーテル 15 部に変える以外は、合成例 5 と同様にしてエポキシ変性重合体 (H) を得た。合成結果を表 1 に示した。

5 [合成例 9]

特開平 7-258318 号公報に記載されている Li 系リビングアニオン重合触媒 [n-BuLi / テトラメチレンジアミン (TMEDA : リビングアニオン安定化剤) = 1 / 1 (モル比)] を用いて、1, 3-シクロヘキサジエン (C-HD) を重合して 1, 4-付加型重合体を得た。次いで、この付加型重合体を水素添加して、水素添加物 (水素化率 $\geq 99\%$ 、 $T_g = 219^\circ\text{C}$ 、 $M_n = 53,400$ 、 $M_w = 78,000$) を得た。

得られた水素化重合体 100 部に対して、アリルアルコール 15 部、ジクミルペルオキシド 5 部、tert-ブチルベンゼン 300 部を混合し、オートクレーブ中にて 150°C 、4 時間反応を行った後、反応液を上記と同様にして凝固、乾燥し、アルコール変性重合体 (I) を得た。それぞれの物性を表 1 に示した。

[合成例 10]

アリルアルコール 15 部をトリメトキシビニルシラン 20 部に変える以外は、合成例 5 と同様にしてシラン変性重合体 (J) を得た。合成結果を表 1 に示した。

[合成例 11]

アリルアルコール 15 部を無水マレイン酸 2 部に変える以外は、合成例 9 と同様にして無水マレイン酸変性重合体を得た。得られた重合体 100 部に対して、水 1 部及びトリエチルアミン 1 部を加えて、 150°C で 1 時間加水分解反応を行い、マレイン酸変性重合体

(K)を得た。合成結果を表1に示した。

[合成例12]

アリルアルコール15部をアリルグリシジルエーテル15部に変える以外は、合成例9と同様にしてエポキシ変性重合体(L)を得た。合成結果を表1に示した。

[合成例13]

数平均分子量(Mn)が9,200のポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテル:PPE)100部と、無水マレイン酸1.5部、及び2,5-ジメチル-2,5-ジ(t-ブチルパーオキシ)ヘキサン(日本油脂(株)製パーヘキサ25B)1.0部を室温でドライブレンドした後、シリンダー温度300℃、スクリー回転数230rpmの条件で2軸押出機により押し出して、無水マレイン酸変性ポリフェニレンエーテル(PPE)(G)を得た。その合成結果を表1に示した。

15

20

25

表 1

	ポリマー					変性ポリマー									
	組成 ($\text{mol}\%$)	重合 方式	水添率 (%)	Tg ($^{\circ}\text{C}$)	Mn ($\times 10^4$)	Mw ($\times 10^4$)	変性基	変性率 ($\text{mol}\%$)	Tg ($^{\circ}\text{C}$)	Mn ($\times 10^4$)	Mw ($\times 10^4$)	吸水率 (%)	誘電率 (ϵ)	誘電 正接 ($\tan \delta$)	コード
合成例 1	ETD	開環	≥ 99	138	1.85	3.16	7-エポキシ	8	140	1.75	3.19	0.03	2.45	0.001	A
合成例 2	ETD	開環	≥ 99	138	1.85	3.16	7-エポキシ	11	131	1.81	3.36	0.01	2.34	0.001	B
合成例 3	ETD	開環	≥ 99	138	1.85	3.16	7-エポキシ	2	154	1.77	2.91	0.01	2.38	0.0005	C
合成例 4	ETD	開環	≥ 99	138	1.85	3.16	7-エポキシ	7	150	1.75	2.99	0.02	2.41	0.001	D
合成例 5	TCD/1FV/ (38/62)	付加	—	135	1.52	3.56	7-エポキシ	8	135	1.44	3.74	0.01	2.38	0.001	E
合成例 6	TCD/1FV/ (38/62)	付加	—	135	1.52	3.56	7-エポキシ	9	129	1.43	3.87	0.01	2.36	0.001	F
合成例 7	TCD/1FV/ (38/62)	付加	—	135	1.52	3.56	7-エポキシ	2	148	1.42	3.41	0.03	2.37	0.0005	G
合成例 8	TCD/1FV/ (38/62)	付加	—	135	1.52	3.56	7-エポキシ	6	145	1.52	3.72	0.02	2.40	0.001	H
合成例 9	C-HD	付加	≥ 99	219	5.34	7.80	7-エポキシ	9	220	4.92	7.99	0.01	2.38	0.001	I
合成例 10	C-HD	付加	≥ 99	219	5.34	7.80	7-エポキシ	8	207	0.55	0.95	0.01	2.34	0.001	J
合成例 11	C-HD	付加	≥ 99	219	5.34	7.80	7-エポキシ	2	225	1.68	2.79	0.03	2.40	0.0007	K
合成例 12	C-HD	付加	≥ 99	219	5.34	7.80	7-エポキシ	5	223	0.85	1.54	0.02	2.40	0.001	L
合成例 13	PPE	—	—	178	0.92	1.33	7-エポキシ	1	183	0.85	1.54	0.10	3.05	0.01	M

(脚注)

(1) E T D : エチルテトラシクロドデセン

(2) T C D : テトラシクロドデセン

(3) C - H D : 1, 3 - シクロヘキサジエン

5 (4) P P E : ポリフェニレンエーテル

[実施例 1 ~ 1 7]

合成例 1 ~ 1 3 で得られた各重合体に、それぞれシリカ粒子 (粒
径 0. 0 1 μ m) 及びビスフェノール F 型エポキシ樹脂を表 2 に示
した配合比で添加し、これを樹脂成分量が 3 0 % となるようにキシ
10 レンに溶解した。さらに、導電性粒子としてハンダ粒子を、基材高
分子 1 0 0 重量部に対して、3 重量部配合した。得られた溶液をス
ピンコーターを用いて厚さ 3 m m のポリテトラフルオロエチレン板
上で 6 0 ~ 7 0 μ m に薄膜化し、1 5 0 $^{\circ}$ C \times 1 時間窒素中で乾燥さ
せた。このフィルムの作成時、及び 6 カ月間保存後の接着強度を表
15 2 に示した。

また、得られたフィルムをガラスエポキシ基板上に置き、その上
からシリコンを基体とする半導体部品 (1 0 0 μ m ピッチ、3 6 0
ピン) を 1 9 0 $^{\circ}$ C \times 5 秒間加熱、圧着して接合した。そして、この
試料の作成時、及び 6 ヶ月後の温度サイクル試験 (T C T)、及び
20 プレッシュャークッカー試験 (P C T) における不良発生の有無を調
べた。評価結果を表 2 に示したが、いずれの試料も優れた結果を示
した。

[実施例 1 8]

基材高分子として、官能基含有ノルボルネン系開環重合体水素添
25 加物 (日本合成ゴム社製 A R T O N、M n = 1 7, 6 0 0、M w =
5 7, 7 0 0、フーリエ変換赤外分光法によりエステル結合による

カルボニルの吸収を確認、 $T_g = 171^\circ\text{C}$ 、吸水率 0.2%、誘電率：3.24、誘電正接：0.022)を用いて、表2に示した配合比で接着剤組成物と試料を作成し、実施例1～17と同様に作成時及び6ヶ月保存後の接着強度の測定、温度サイクル試験、プレッシャークッカー試験を実施し、問題ないことを確認した。結果を表2に示す。

[比較例1～3]

接着剤の主剤（基材高分子）として、ビスフェノールF型エポキシ樹脂を用い、これに硬化剤として2-エチル-4-メチルイミダゾールを5部添加して接着剤を調製した。そして、表2に示した接合条件で、実施例1～18と同様に、接着強度の測定、温度サイクル試験、プレッシャークッカー試験を実施した。その結果、満足のいくものは、硬化時間を60秒としたものだけであった。したがって、エポキシ樹脂は、硬化速度が遅く、生産性に問題があった。また、6ヶ月間保存後に同様の試験をしようとしたが、試料が完全に硬化していた。

表 2

	ポリマー (部)	充填剤		配合剤		接合条件		フィルム作成時			フィルム6カ月後		
		種類	添加量 (部)	種類	添加量 (部)	温度 (°C)	時間 (秒)	接着強度 (kg/cm ²)	TCT	PCT	接着強度 (kg/cm ²)	TCT	PCT
実施例 1	A(100)	—	—	—	—	190	5	105	○	○	105	○	○
実施例 2	A(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	110	○	○	110	○	○
実施例 3	B(100)	—	—	—	—	190	5	100	○	○	100	○	○
実施例 4	B(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	100	○	○	100	○	○
実施例 5	C(100)	—	—	—	—	190	5	135	○	○	125	○	○
実施例 6	C(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	135	○	○	140	○	○
実施例 7	D(100)	—	—	—	—	190	5	100	○	○	110	○	○
実施例 8	D(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	100	○	○	100	○	○
実施例 9	E(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	95	○	○	90	○	○
実施例 10	F(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	95	○	○	100	○	○
実施例 11	G(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	120	○	○	130	○	○
実施例 12	H(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	100	○	○	100	○	○
実施例 13	I(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	95	○	○	105	○	○
実施例 14	J(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	100	○	○	95	○	○

表 2 (続き)

	ポリマー (部)	充填剤		配合剤		接合条件		フィルム作成時			フィルム6カ月後		
		種類	添加量 (部)	種類	添加量 (部)	温度 (°C)	時間 (秒)	接着強度 (kg/cm ²)	TCT	PCT	接着強度 (kg/cm ²)	TCT	PCT
実施例 15	K(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	125	○	○	125	○	○
実施例 16	L(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	90	○	○	90	○	○
実施例 17	M(100)	シリカ	20	エポキシ	20	190	5	75	○	○	80	○	○
実施例 18	ARTON (100)	シリカ	40	エポキシ	20	190	5	120	○	○	120	○	○
比較例 1	エポキシ (100)	シリカ	20	2E4MZ	5	190	5	10	×	×	—	×	×
比較例 2	エポキシ (100)	シリカ	20	2E4MZ	5	190	30	70	×	×	—	×	×
比較例 3	エポキシ (100)	シリカ	20	2E4MZ	5	190	60	150	○	○	—	×	×

(脚注)

(1) エポキシ：ビスフェノールF型エポキシ樹脂

(2) 2E4MZ：2-エチル-4-メチルイミダゾール

5 [実施例19]

合成例1で得られた重合体(A)100部に対して、表3に示した配合比で平均粒径 $7\mu\text{m}$ のNi粒子(導電性フィラー①)を添加し、これを樹脂成分量が30%となるようにキシレンに溶解した。この溶液を用いて、厚さ $50\sim 70\mu\text{m}$ のシートを作製した。得られたシートをガラスエポキシ基板上に置き、その上からシリコンを
10 基体とする半導体部品($125\mu\text{m}$ ピッチ、360ピン)を $200^\circ\text{C}\times 30$ 秒間加熱、圧着して接合した。この試料の高温高湿試験を行った。評価結果を表3に示したが、優れた結果を示した。なお、高温高湿試験の方法は、表3の後に示す。

15 [実施例20～23]

表3に示す各重合体と導電性フィラーを、表3に示す配合割合で用いたこと以外は、実施例19と同様にしてシートを作製し、高温高湿試験を行った。評価結果を表3に示したが、いずれの試料の優れた結果を示した。

20 [実施例24]

平均粒径 $7\mu\text{m}$ のNi粒子にアクリル/スチレン樹脂を5:100の割合で混合して、ハイブリタイゼーションシステム(奈良機械社製)を用いて回転数16200rpmで10分間処理することによりNi粒子に厚さ $0.1\sim 0.2\mu\text{m}$ の被膜を形成したマイクロカ
25 プセル型導電性フィラー④を得た。

この導電性フィラー④を用いたこと以外は、実施例19と同様に

してシートを作製し、高温高湿試験を行った。評価結果を表3に示したが、優れた結果を示した。

[実施例25]

平均粒径5 μ mのシリカにNi/Auメッキを施した粒子を用いて、実施例24と同様に、厚さ0.1~0.2 μ mのアクリル/スチレン樹脂被膜を形成したマイクロカプセル型導電性フィラー⑤を得た。

この導電性フィラー⑤を用いたこと以外は、実施例19と同様に、シートを作製し、高温高湿試験を行った。評価結果を表3に示したが、優れた結果を示した。

[実施例26]

平均粒径5 μ mのベンゾグアナミン樹脂（日本化学社製、ブライト20GNRY4.6EH）にNi/Auメッキを施した粒子を用いて、実施例24と同様に、厚さ0.1~0.2 μ mのアクリル/スチレン樹脂被膜を形成したマイクロカプセル型導電性粒子⑥を得た。

この導電性フィラー⑥を用いたこと以外は、実施例19と同様に、シートを作製し、高温高湿試験を行った。評価結果を表3に示したが、優れた結果を示した。

[比較例4~6]

トルエン80重量部に、エポキシ樹脂（エピコート1009、油化シェルエポキシ社製）100重量部、硬化剤としてHX3941HP（旭化成社製）170重量部を添加し、エポキシ樹脂ワニスを作製した。

このエポキシ樹脂ワニスに、表3に示す導電性フィラーを配合し、実施例19と同様に、半硬化状態のシートを作製した。このよう

にして作製したハードベーク前のシートを用いて、実施例 19 と同様にガラスエポキシ基板上に半導体部品を圧着した。評価結果を表 3 に示したが、いずれも高温高湿試験後の接続抵抗値が 50 Ω 以上であり、導通不良となった。

5

表 3

10

15

	ポリマー (部)	導電性フィラー		高温高湿試験	
		種類	(部)	初期	1000 時間
実施例 19	A (100)	①	20	◎	◎
実施例 20	C (100)	②	5	◎	◎
実施例 21	C (100)	③	5	◎	◎
実施例 22	E (100)	①	20	◎	◎
実施例 23	J (100)	①	20	◎	○
実施例 24	A (100)	④	20	◎	◎
実施例 25	A (100)	⑤	20	◎	◎
実施例 26	A (100)	⑥	20	◎	◎
比較例 4	I 材料 (100)	①	20	◎	×
比較例 5	I 材料 (100)	②	5	◎	×
比較例 6	I 材料 (100)	③	5	◎	×

(脚注)

(1) 高温高湿試験は、サンプルを湿度 100%、温度 105℃の環境下に 1,000 時間放置し、接続抵抗値の上昇の度合を調べ、以下の基準で評価した。

< 初期 >

◎ : 10 Ω 以下、○ : 20 Ω 以下、△ : 30 Ω 以下、× : 50 Ω 以上。

< P C T 後 >

◎ : 1 0 Ω 以下、

○ : 2 0 Ω 以下、

△ : 3 0 Ω 以下、

5 × : 5 0 Ω 以上。

(2) 導電性フィラー

導電性フィラー① : 平均粒径 7 μ m の N i 粒子

導電性フィラー② : 平均粒径 5 μ m のシリカに N i / A u メッキを
施した粒子

10 導電性フィラー③ : 平均粒径 5 μ m のベンゾグアナミン樹脂 (日本
化学社製、ブライト 2 0 G N R Y 4 . 6 E H) に N i / A u メッキ
を施した粒子

導電性フィラー④ : マイクロカプセル型導電性フィラー

導電性フィラー⑤ : マイクロカプセル型導電性フィラー

15 導電性フィラー⑥ : マイクロカプセル型導電性フィラー

< 産業上の利用可能性 >

本発明によれば、特に半導体部品のフリップチップボンディング
に適した、保存安定性、生産性、強度特性、耐熱性に優れた接着剤
20 及び該接着剤を用いた電子部品パッケージが提供される。本発明の
接着剤は、誘電率や誘電正接などの電気特性、及び耐湿性に優れ、
しかも、半導体チップや実装基板などとの接着性に優れる。本発明
の半導体部品接着剤は、電気・電子機器分野において特に高速性、
高信頼性の要求される半導体パッケージ用接着剤などとして、広範
25 な分野において有用である。

請求の範囲

1. (a) 環状オレフィン系重合体及び(b)主鎖中に芳香環の繰り返し単位を有する芳香族縮合系重合体からなる群より選ばれる少なくとも一種の数平均分子量が1,000~500,000の環構造含有熱可塑性重合体を基材高分子とする半導体部品接着剤。

2. 環構造含有熱可塑性重合体が、該重合体の総モノマー数を基準として、5~100モル%の官能基を有するものである請求項1記載の半導体部品接着剤。

3. 官能基が、アルコール基、エポキシ基、カルボキシ基、酸無水物基、またはシラノール基である請求項2記載の半導体部品接着剤。

4. 環状オレフィン系重合体(a)が、(1)ノルボルネン環を有する脂環族単量体の付加(共)重合体、(2)ノルボルネン環を有する脂環族単量体とビニル化合物との付加共重合体、(3)ノルボルネン環を有する脂環族単量体の開環(共)重合体、及び(4)ノルボルネン環を有する脂環族単量体の開環(共)重合体の水素添加物からなる群より選ばれる少なくとも一種の熱可塑性ノルボルネン系樹脂である請求項1または2に記載の半導体部品接着剤。

5. 環状オレフィン系重合体(a)が、環状共役ジエンの付加重合体、及び該付加重合体の水素添加物からなる群より選ばれる少なくとも一種である請求項1または2に記載の半導体部品接着剤。

6. 芳香族縮合系重合体 (b) が、ポリフェニレンエーテルである請求項 1 または 2 に記載の半導体部品接着剤。

7. 芳香族縮合系重合体 100 重量部に対して、非導電性の無機フィラー 1 ~ 100 重量部を含有する樹脂組成物からなる請求項 1 または 2 に記載の半導体部品接着剤。

8. 芳香族縮合系重合体 100 重量部に対して、導電性フィラー 1 ~ 100 重量部を含有する樹脂組成物からなる請求項 1 または 2 に記載の半導体部品接着剤。

9. 異方性導電材である請求項 8 記載の半導体部品接着剤。

10. 芳香族縮合系重合体 100 重量部に対して、低分子量樹脂 1 ~ 50 重量部を含有する樹脂組成物からなる請求項 1 または 2 に記載の半導体部品接着剤。

11. 芳香族縮合系重合体のガラス転移温度が 100℃ 以上である請求項 1 記載の半導体部品接着剤。

20

12. 環状オレフィン系重合体 (a) が、テトラシクロドデセン類の開環共重合体の水素添加物、テトラシクロドデセン類とビニル化合物との付加共重合体、または 1, 3-シクロヘキサジエンの付加重合体の水素添加物を、官能基含有不飽和化合物によりグラフト変性して官能基を導入した変性ポリマーである請求項 2 記載の半導体部品接着剤。

1 3 . 非導電性の無機フィラーが、シリカである請求項 7 記載の半導体部品接着剤。

1 4 . 低分子量樹脂が、エポキシ樹脂である請求項 1 0 記載の半導体部品接着剤。

1 5 . 芳香族縮合系重合体 1 0 0 重量部に対して、充填剤 1 ~ 1 0 0 重量部、及び低分子量樹脂 1 ~ 5 0 重量部を含有する樹脂組成物からなる請求項 1 または 2 に記載の半導体部品接着剤。

10

1 6 . 請求項 1 ないし 1 5 のいずれか 1 項に記載の接着剤を製膜してなる半導体部品接着フィルム。

1 7 . 請求項 1 ないし 1 5 のいずれか 1 項に記載の接着剤の溶液またはフィルムを用いて、半導体部品と基板とを接合させてなる半導体部品パッケージ。

1 8 . 基板表面に請求項 1 6 記載の接着フィルムを積層し、次いで、該接着フィルムの上に半導体部品を設置した後、環構造含有熱可塑性重合体のガラス転移温度以上の温度で加熱・加圧することにより接着し、しかる後、冷却することを特徴とする半導体部品パッケージの製造方法。

1 9 . 基板表面に請求項 1 ないし 1 5 のいずれか 1 項に記載の接着剤の溶液を塗布した後、溶媒を乾燥させて接着層を形成し、次いで、該接着層の上に半導体部品を設置した後、環構造含有熱可塑

25

性重合体のガラス転移温度以上の温度で加熱・加圧することにより
接着し、しかる後、冷却することを特徴とする半導体部品パッケージ
の製造方法。

5

10

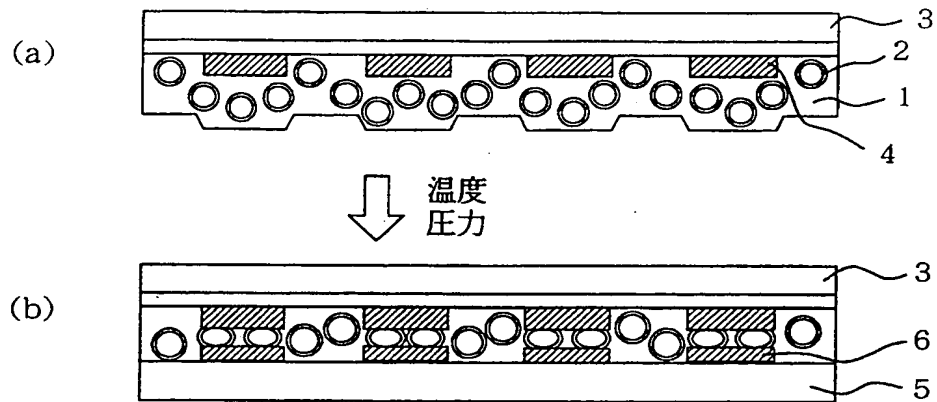
15

20

25

1/1

図 1



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/03033

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁶ C09J123/26, 165/00, 171/12, H01B1/20 // (C09J123/26, 163:00),
(C09J165/00, 163:00), (C09J171/12, 163:00)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁶ C09J123/00-123/36, 165/00, 171/08-171/14, 163/00-163/10,
H01B1/20-1/24

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E, X	JP, 10-241461, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 11 September, 1998 (11. 09. 98), Claims ; Examples 1, 2 (Family: none)	1, 7-8, 10-11, 13-19
E, Y E, A		9 2-6, 12
E, X	JP, 10-251606, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 22 September, 1998 (22. 09. 98), Claims ; Examples 1, 2 (Family: none)	1, 7-8, 10-11, 13-19
E, Y E, A		9 2-6, 12
Y A	JP, 62-243668, A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd., et al.), 24 October, 1987 (24. 10. 87), Claims (Family: none)	9 1-8, 10-19

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier document but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
29 September, 1998 (29. 09. 98)

Date of mailing of the international search report
13 October, 1998 (13. 10. 98)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/03033

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 3-95286, A (Mitsui Petrochemical Industries, Ltd.), 19 April, 1991 (19. 04. 91), Claims (Family: none)	1-19
A	JP, 4-288342, A (Japan Synthetic Rubber Co., Ltd.), 13 October, 1992 (13. 10. 92), Claims (Family: none)	1-19
A	JP, 8-239642, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 17 September, 1996 (17. 09. 96), Claims (Family: none)	1-19

国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 98/03033

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁶ C 09 J 123/26, 165/00, 171/12, H 01 B 1/20
 // (C 09 J 123/26, 163:00), (C 09 J 165/00, 163:00),
 (C 09 J 171/12, 163:00)

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁶ C 09 J 123/00-123/36, 165/00, 171/08-171/14,
 163/00-163/10,
 H 01 B 1/20-1/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
E, X E, Y E, A	J P, 10-241461, A (旭化成工業株式会社), 11. 9月. 1998 (11. 09. 98), 特許請求の範囲, 実施例 1, 2 (ファミリーなし)	1, 7-8, 10-11, 13-19 9 2-6, 12

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

29. 09. 98

国際調査報告の発送日

13.10.98

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山本 昌広

4 J

9280

電話番号 03-3581-1101 内線 3459

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
E, X E, Y E, A	J P, 10-251606, A (旭化成工業株式会社), 22. 9月. 1998 (22. 09. 98), 特許請求の範囲, 実施例 1, 2 (ファミリーなし)	1, 7-8, 10-11, 13-19 9 2-6, 12
Y A	J P, 62-243668, A (松下電器産業株式会社外 1 名), 24. 10月. 1987 (24. 10. 97), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	9 1-8, 10-19
A	J P, 3-95286, A (三井石油化学工業株式会社), 19. 4月. 1991 (19. 04. 91), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-19
A	J P, 4-288342, A (日本合成ゴム株式会社), 13. 10月. 1992 (13. 10. 92), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-19
A	J P, 8-239642, A (旭化成工業株式会社), 17. 9月. 1996 (17. 09. 96), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-19

09/462214

Docket No. 10936-38

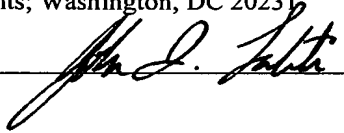
CERTIFICATE OF MAILING

"Express Mail" mailing label #: EL528222655US

Date of Deposit: January 4, 2000

I hereby certify that this paper or fee is being deposited with the United States Postal Service "Express Mail Post Office to Addressee" service under 37 CFR 1.10 on the date indicated above and is addressed to: Box PCT; Assistant Commissioner for Patents; Washington, DC 20231

428 Rec'd PCT/PTO PATENT 04 JAN 2000



IN THE UNITED STATES PATENT & TRADEMARK OFFICE

Applicant: Junji KODEMURA : Paper No.:

Based On: PCT/JP98/03033 : Group Art Unit:

Filing Date: January 4, 2000 : Examiner:

For: **Adhesive for Semiconductor Part (as amended)**

**TRANSMITTAL OF ENGLISH LANGUAGE TRANSLATION OF ANNEXES
TO THE INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

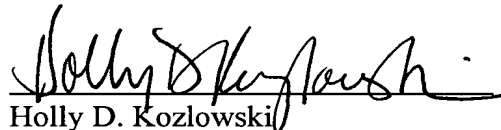
BOX PCT

Assistant Commissioner for Patents
Washington, DC 20231

Dear Sir:

Submitted herewith an English language translation of the annex to the International Preliminary Examination Report, which corresponds with pages 71-73 of the application, together with an explanation of the amendments set forth in the annex. Entry of the annex is believed to be in order and is respectfully requested.

Respectfully submitted,



Holly D. Kozlowski
Registration No. 30,468
Dinsmore & Shohl LLP
1900 Chemed Center
255 East Fifth Street
Cincinnati, Ohio 45202
(513) 977-8568

AMENDMENT

(Amendment under the provisions of
Article 11 of the Patent Law)

Dated: May 21, 1999

Hon. Commissioner of Patent Office

1. Indication of International Application: PCT/JP98/03033

2. Applicant:

Name: NIPPON ZEON CO., LTD.

Address: 6-1, Marunouchi 2-chome, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-0005 Japan

Nationality: Japan

Domicile: Japan

3. Agent:

Name: NISHIKAWA Shigeaki, Patent Attorney
(Reg'n No. 9352)

Address: Visual city 401, 43-8, Higashi-Nippori
3-chome, Arakawa-ku, Tokyo 116-0014 Japan

4. Subject of the Amendment:

Claims.

5. Details of the Amendment: See Appendixes

- (1) In the Claim 7, amend "aromatic-condensed polymer" to
--cyclic structure-containing thermoplastic polymer--.
- (2) In the Claim 8, amend "aromatic-condensed polymer" to
--cyclic structure-containing thermoplastic polymer--.
- (3) In the Claim 10, amend "aromatic-condensed polymer" to
--cyclic structure-containing thermoplastic polymer--.
- (4) In the Claim 11, amend "aromatic-condensed polymer" to
--cyclic structure-containing thermoplastic polymer--.
- (5) In the Claim 15, amend "aromatic-condensed polymer" to
--cyclic structure-containing thermoplastic polymer--.

6. List of Appended Documents:

- (1) Substitute sheets for pages 53 and each one copy
54 (corresponding to pages
71 to 73 of its English
version) in the claims

norbornene ring and a vinyl compound, (3) a ring-opening (co)polymer of an alicyclic monomer having a norbornene ring and (4) a hydrogenated product of the ring-opening (co)polymer of the alicyclic monomer having a norbornene
5 ring.

5. The adhesive for semiconductor parts according to Claim 1 or 2, wherein the cycloolefin polymer (a) is at least one selected from the group consisting of an
10 addition polymer of a cyclic conjugated diene monomer and a hydrogenated product of the addition polymer.

6. The adhesive for semiconductor parts according to Claim 1 or 2, wherein the aromatic-condensed polymer (b)
15 is poly(phenylene ether).

7. The adhesive for semiconductor parts according to Claim 1 or 2, which is composed of a resin composition comprising a non-conductive inorganic filler in a
20 proportion of 1 to 100 parts by weight per 100 parts by weight of the aromatic-condensed polymer.

8. The adhesive for semiconductor parts according to Claim 1 or 2, which is composed of a resin composition
25 comprising a conductive filler in a proportion of 1 to 100 parts by weight per 100 parts by weight of the aromatic-condensed polymer.

Replaced by Article 34

9. The adhesive for semiconductor parts according to Claim 8, which is an anisotropic conductive material.

10. The adhesive for semiconductor parts according to
5 Claim 1 or 2, which is composed of a resin composition comprising a low-molecular weight resin in a proportion of 1 to 50 parts by weight per 100 parts by weight of the aromatic-condensed polymer.

10 11. The adhesive for semiconductor parts according to Claim 1, wherein the glass transition temperature of the aromatic-condensed polymer is at least 100°C.

12. The adhesive for semiconductor parts according to
15 Claim 2, wherein the cycloolefin polymer (a) is a modified polymer obtained by graft-modifying a hydrogenated product of a ring-opening copolymer of tetracyclododecene or a derivative thereof, an addition copolymer of
tetracyclododecene or a derivative thereof and a vinyl
20 compound, or a hydrogenated product of an addition polymer of 1,3-cyclohexadiene with a functional group-containing unsaturated compound.

13. The adhesive for semiconductor parts according to
25 Claim 7, wherein the non-conductive inorganic filler is silica.

14. The adhesive for semiconductor parts according to Claim 10, wherein the low-molecular weight resin is an epoxy resin.

5 15. The adhesive for semiconductor parts according to Claim 1 or 2, which is composed of a resin composition comprising, per 100 parts by weight of the aromatic-condensed polymer, 1 to 100 parts by weight of a filler and 1 to 50 parts by weight of a low-molecular weight
10 resin.

16. An adhesive film for semiconductor parts, which is obtained by forming a film from the adhesive according to any one of Claims 1 to 15.

15 17. A semiconductor part package obtained by bonding a semiconductor part to a substrate with a solution or film of the adhesive according to any one of Claims 1 to 15.

20 18. A process for producing a semiconductor part package, which comprises laminating the adhesive film according to Claim 16 on the surface of a substrate, placing a semiconductor part on the adhesive film, bonding
25 the semiconductor part to the substrate by heating and pressurizing the adhesive film at a temperature not lower than the glass transition temperature of the cyclic

Replaced by Article 34

P C T

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
〔PCT36条及びPCT規則70〕

REC'D 22 OCT 1999

WIPO PCT

出願人又は代理人 の書類記号 ZE-684	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/ IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 98/03033	国際出願日 (日.月.年) 06.07.98	優先日 (日.月.年) 04.07.97
国際特許分類 (IPC) Int.Cl ⁶ C09J123/26, C09J165/00, C09J171/12, H01B1/20 //(C09J123/26, 163:00), (C09J165/00, 163:00), (C09J171/12, 163:00)		
出願人 (氏名又は名称) 日本ゼオン株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 4 ページからなる。
- ☒ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)
この附属書類は、全部で 2 ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV ☐ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☒ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 14.01.99	国際予備審査報告を作成した日 05.10.99	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 安藤 達也 印 電話番号 03-3581-1101 内線 3483	4 V 9285

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とする)

☐ 出願時の国際出願書類

<input checked="" type="checkbox"/>	明細書	第	1-51	ページ、	出願時のもの
	明細書	第		ページ、	国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
	明細書	第		ページ、	付の書簡と共に提出されたもの
	明細書	第		ページ、	付の書簡と共に提出されたもの

<input checked="" type="checkbox"/>	請求の範囲	第	1-6, 9, 12-14, 16-19	項、	出願時に提出されたもの
	請求の範囲	第		項、	PCT19条の規定に基づき補正されたもの
	請求の範囲	第		項、	国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
	請求の範囲	第	7, 8, 10, 11, 15	項、	21.05.99 付の書簡と共に提出されたもの
	請求の範囲	第		項、	付の書簡と共に提出されたもの

<input checked="" type="checkbox"/>	図面	第	1	図、	出願時に提出されたもの
	図面	第		ページ/図、	国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
	図面	第		ページ/図、	付の書簡と共に提出されたもの
	図面	第		ページ/図、	付の書簡と共に提出されたもの

2. 補正により、下記の書類が削除された。

<input type="checkbox"/>	明細書	第		ページ
<input type="checkbox"/>	請求の範囲	第		項
<input type="checkbox"/>	図面	第		ページ/図

3. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

4. 追加の意見(必要ならば)

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)

請求の範囲 1 — 19 有
請求の範囲 無

進歩性 (I S)

請求の範囲 1 — 19 有
請求の範囲 無

産業上の利用可能性 (I A)

請求の範囲 1 — 19 有
請求の範囲 無

2. 文献及び説明

請求の範囲1—19に記載された発明は、国際調査報告において引用された文献に記載された発明ではなく、また、それらの文献の記載から当業者が容易に発明をすることができたものでもない。

VI. ある種の引用文献

1. ある種の公表された文書 (PCT規則70.10)

出願番号 特許番号	公知日 (日. 月. 年)	出願日 (日. 月. 年)	優先日 (有効な優先権の主張) (日. 月. 年)
J P, 10-241461, A (E, X)	11. 09. 98	27. 02. 97	
J P, 10-251606, A (E, X)	22. 09. 98	10. 03. 97	

2. 書面による開示以外の開示 (PCT規則70.9)

書面による開示以外の開示の種類	書面による開示以外の開示の日付 (日. 月. 年)	書面による開示以外の開示に言及している 書面の日付 (日. 月. 年)
-----------------	------------------------------	--

6. 芳香族縮合系重合体 (b) が、ポリフェニレンエーテルである請求項 1 または 2 に記載の半導体部品接着剤。

7. (補正後) 環構造含有熱可塑性重合体 100 重量部に対して、非導電性の無機フィラー 1 ～ 100 重量部を含有する樹脂組成物からなる請求項 1 または 2 に記載の半導体部品接着剤。

8. (補正後) 環構造含有熱可塑性重合体 100 重量部に対して、導電性フィラー 1 ～ 100 重量部を含有する樹脂組成物からなる請求項 1 または 2 に記載の半導体部品接着剤。

9. 異方性導電材である請求項 8 記載の半導体部品接着剤。

10. (補正後) 環構造含有熱可塑性重合体 100 重量部に対して、低分子量樹脂 1 ～ 50 重量部を含有する樹脂組成物からなる請求項 1 または 2 に記載の半導体部品接着剤。

11. (補正後) 環構造含有熱可塑性重合体のガラス転移温度が 100℃ 以上である請求項 1 記載の半導体部品接着剤。

20

12. 環状オレフィン系重合体 (a) が、テトラシクロドデセン類の開環共重合体の水素添加物、テトラシクロドデセン類とビニル化合物との付加共重合体、または 1, 3-シクロヘキサジエンの付加重合体の水素添加物を、官能基含有不飽和化合物によりグラフト変性して官能基を導入した変性ポリマーである請求項 2 記載の半導体部品接着剤。

13. 非導電性の無機フィラーが、シリカである請求項7記載の半導体部品接着剤。

14. 低分子量樹脂が、エポキシ樹脂である請求項10記載の半導体部品接着剤。

15. (補正後) 環構造含有熱可塑性重合体100重量部に対して、充填剤1～100重量部、及び低分子量樹脂1～50重量部を含有する樹脂組成物からなる請求項1または2に記載の半導体部品接着剤。

16. 請求項1ないし15のいずれか1項に記載の接着剤を製膜してなる半導体部品接着フィルム。

17. 請求項1ないし15のいずれか1項に記載の接着剤の溶液またはフィルムを用いて、半導体部品と基板とを接合させてなる半導体部品パッケージ。

18. 基板表面に請求項16記載の接着フィルムを積層し、次いで、該接着フィルムの上に半導体部品を設置した後、環構造含有熱可塑性重合体のガラス転移温度以上の温度で加熱・加圧することにより接着し、しかる後、冷却することを特徴とする半導体部品パッケージの製造方法。

19. 基板表面に請求項1ないし15のいずれか1項に記載の接着剤の溶液を塗布した後、溶媒を乾燥させて接着層を形成し、次いで、該接着層の上に半導体部品を設置した後、環構造含有熱可塑

3-T
09/462214
Translation

17X1

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference ZE-684	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP98/03033	International filing date (day/month/year) 06 July 1998 (06.07.1998)	Priority date (day/month/year) 04 July 1997 (04.07.1997)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C09J 123/26, 165/00, 171/12, H01B 1/20 // (C09J 123/26, 163:00) (C09J 165/00, 163:00) (C09J 171/12, 163:00)		
Applicant NIPPON ZEON CO., LTD.		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>4</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>2</u> sheets.</p>	
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability, citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input checked="" type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>	

RECEIVED
JUL 12 2000
TC 1700 MAIL ROOM
JUL 13 2000
TC 1700 MAIL ROOM

Date of submission of the demand 14 January 1999 (14.01.1999)	Date of completion of this report 05 October 1999 (05.10.1999)
Name and mailing address of the IPEA/JP Japanese Patent Office, 4-3 Kasumigaseki 3-chome Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan Facsimile No.	Authorized officer Telephone No. (81-3) 3581 1101

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP98/03033

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (*Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.*):

- ☐ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1-51, as originally filed,
 pages _____, filed with the demand,
 pages _____, filed with the letter of _____,
 pages _____, filed with the letter of _____.
- ☒ the claims, Nos. 1-6,9,12-14,16-19, as originally filed,
 Nos. _____, as amended under Article 19,
 Nos. _____, filed with the demand,
 Nos. 7,8,10,11,15, filed with the letter of 21 May 1999 (21.05.1999),
 Nos. _____, filed with the letter of _____.
- ☒ the drawings, sheets/fig 1, as originally filed,
 sheets/fig _____, filed with the demand,
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____,
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP98/03033

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-19	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-19	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-19	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

The subject matters of claims 1-19 are neither described in any of the documents cited in the ISR, nor could have been easily conceived by a person skilled in the art from those documents.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP98/03033

VI. Certain documents cited

1. Certain published documents (Rule 70.10)

<u>Application No. Patent No.</u>	<u>Publication date (day/month/year)</u>	<u>Filing date (day/month/year)</u>	<u>Priority date (valid claim) (day/month/year)</u>
JP, 10-241461, A (E,X)	11 September 1998 (11.09.1998)	27 February 1997 (27.02.1997)	
JP, 10-251606, A (E,X)	22 September 1998 (22.09.1998)	10 March 1997 (10.03.1997)	

2. Non-written disclosures (Rule 70.9)

<u>Kind of non-written disclosure</u>	<u>Date of non-written disclosure (day/month/year)</u>	<u>Date of written disclosure referring to non-written disclosure (day/month/year)</u>

PCT



国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 ZE-684	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 98/03033	国際出願日 (日.月.年) 06.07.98	優先日 (日.月.年) 04.07.97
出願人 (氏名又は名称) 日 本 ゼ オ ン 株 式 会 社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。
2. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。
3. ☐ この国際出願は、ヌクレオチド及び/又はアミノ酸配列リストを含んでおり、次の配列リストに基づき国際調査を行った。
 - ☐ この国際出願と共に提出されたもの
 - ☐ 出願人がこの国際出願とは別に提出したもの
 - ☐ しかし、出願時の国際出願の開示の範囲を越える事項を含まない旨を記載した書面が添付されていない
 - ☐ この国際調査機関が書換えたもの

4. 発明の名称は
 - ☒ 出願人が提出したものを承認する。
 - ☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は
 - ☒ 出願人が提出したものを承認する。
 - ☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、
第 図とする。
 - ☐ 出願人が示したとおりである。
 - ☒ なし
 - ☐ 出願人は図を示さなかった。
 - ☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁶ C 09 J 123/26, 165/00, 171/12, H 01 B 1/20
 // (C 09 J 123/26, 163:00), (C 09 J 165/00, 163:00),
 (C 09 J 171/12, 163:00)

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁶ C 09 J 123/00-123/36, 165/00, 171/08-171/14,
 163/00-163/10,
 H 01 B 1/20-1/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
E, X E, Y E, A	J P, 10-241461, A (旭化成工業株式会社), 11. 9月. 1998 (11. 09. 98), 特許請求の範囲, 実施例 1, 2 (ファミリーなし)	1, 7-8, 10-11, 13-19 9 2-6, 12

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

29. 09. 98

国際調査報告の発送日

13.10.98

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号 100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山本 昌広

4 J

9280

電話番号 03-3581-1101 内線 3459

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
E, X E, Y E, A	J P, 10-251606, A (旭化成工業株式会社), 22. 9月. 1998 (22. 09. 98), 特許請求の範囲, 実施例 1, 2 (ファミリーなし)	1, 7-8, 10-11, 13-19 9 2-6, 12
Y A	J P, 62-243668, A (松下電器産業株式会社外 1 名), 24. 10月. 1987 (24. 10. 97), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	9 1-8, 10-19
A	J P, 3-95286, A (三井石油化学工業株式会社), 19. 4月. 1991 (19. 04. 91), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-19
A	J P, 4-288342, A (日本合成ゴム株式会社), 13. 10月. 1992 (13. 10. 92), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-19
A	J P, 8-239642, A (旭化成工業株式会社), 17. 9月. 1996 (17. 09. 96), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-19